

80/579067

WO 2005/045971

1

PCT/JP2004/016521

AP20 Rec'd PCT/PTO 11 MAY 2006

## 明 細 書

## セパレータおよびセパレータの製造方法

## 技術分野

- [0001] 本発明は、スタック型の固体高分子型燃料電池に備えられるセパレータおよびその製造方法に関する。

## 背景技術

- [0002] 従来から、限りあるエネルギー資源の有効利用や、地球温暖化防止のための省エネルギーの必要性は広く認識されている。今日では、火力発電によって、熱エネルギーを電力エネルギーに変換する形でエネルギー需要が賄われている。

しかしながら、火力発電に必要な石炭および石油は埋蔵量が有限な資源であり、これらに代わる新たなエネルギー資源が必要となっている。そこで注目されているのが水素を燃料にして化学発電する燃料電池である。

燃料電池は、2つの電極と電極間に挟まれた電解質とを有している。陰極では、供給された水素がイオン化して水素イオンとなり電解質中を陽極に向かって移動する。陽極では、供給された酸素と電解質中を移動してきた水素イオンとが反応して水を発生する。水素がイオン化したときに発生した電子が、陰極から配線を通して陽極へと移動することで電流が流れ、電気が発生する。

燃料電池は、主に電解質の違いから4種類に分類される。イオン導電性セラミックスを電解質に用いた固体電解質型燃料電池(SOFC)、水素イオン導電性高分子膜を電解質に用いた固体高分子型燃料電池(PEFC)、高濃度リン酸を電解質に用いたリン酸型燃料電池(PAFC)、アルカリ金属炭酸塩を電解質に用いた熔融炭酸型燃料電池(MCFC)の4種類である。この中でも特に作動温度が80℃と低い固体高分子型燃料電池(PEFC)の開発が進んでいる。

固体高分子型燃料電池の構造は、表面に触媒電極を設けた電解質層と、電解質層を両側から挟み、水素および酸素を供給するための溝を設けたセパレータと、電極発生した電気を回収する集電板などを含んで構成される。電解質層と同じく、セパレータについても改良が重ねられている。

WO 2005/045971

2

PCT/JP2004/016521

セパレータの要求特性としては、導電性が高く、かつ燃料ガスおよび酸化剤ガスに対して気密性が高く、さらに水素および酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐食性を持つ必要がある。

これらの要求を満たすために以下のようなセパレータ材料が使用されている。

最もよく使用されているものとして緻密性カーボンがある。緻密性カーボンは導電性、耐食性に優れ、機械的強度も高い。また加工性がよく軽量である。しかし、振動や衝撃に弱く、切削加工が必要なため、加工費が高くなる。また気体の不浸透化処理を施す必要がある。

また、合成樹脂も使用され、フェノール樹脂、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂が使用される。合成樹脂は、低コストであることが主な特徴であるが、寸法安定性が悪く、導電性にも劣る。

導電性、加工性、密閉性などの観点から、金属が使用されることが多くなっている。金属としては、主にチタン、ステンレスが使用される。しかし、金属は腐食し易く、電解質膜に金属イオンが取り込まれてイオン導電性が低下してしまうため、セパレータ表面に金めっきを施す必要がある。

また、ゴムも使用され、エチレン-プロピレン-ジエンゴムなどが使用される。ゴムは、ガス透過性が低く、シール性が高い。

特開平8-180883号公報には、固体高分子電解質型燃料電池が開示されている。この固体高分子電解質型燃料電池では、セパレータとしてステンレス鋼、チタン合金など大気によって容易に不動態膜が形成される金属薄板を用いており、プレス加工によって所定の形状に加工している。

特開2002-175818号公報には、燃料電池用セパレータが開示されている。この燃料電池用セパレータは、周囲の縁部にリブを形成し、シール部材で挟持されたときの剛性を高めて反りを抑制している。

また、特開2003-297383号公報には、燃料電池用セパレータが開示されている。この燃料電池用セパレータは、金属基板の少なくとも片面に、樹脂と導電性充填剤を混合した体積抵抗率が $1.0\Omega\cdot\text{cm}$ 以下の第1の樹脂層と、体積抵抗率が第1の樹脂層よりも小さい第2の樹脂層とを設け、集電性能と成型性、強度および耐食性を向

WO 2005/045971

3

PCT/JP2004/016521

上している。

金属板を用いたセパレータは、加工性はよいが、酸素ガスによって腐食し易い。また、電解質膜に金属イオンが取り込まれてイオン導電性が低下してしまうため、セパレータ表面に金めっきを施す必要がある。

また、従来のセパレータは、水素ガス、酸素ガスおよび冷却水などが漏れないように、外周部をＯリングなどのシール材を用いて密閉している。

特開平８－１８０８８３号公報および特開２００２－１７５８１８号公報に示されているように、反応ガスおよび冷却用流体が漏れ出るのを防止するために、セパレータの周辺部にガスケットを設けている。

このように、従来の燃料電池では、外周部のセパレータとセルとの間に、シール材を形成する必要がある。また製造工程としては、セパレータを加工形成した後、シール材をセパレータの外周部に貼り付ける工程またはセパレータを芯にして金型内にてシール材を成型する工程が必要である。

#### 発明の開示

[0003] 本発明の目的は、加工性および耐食性に優れたセパレータおよびその製造方法を提供することであり、本発明の他の目的は、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができるセパレータを提供することである。

本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、

燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、

外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、

分離部とシール部とは塑性変形加工によって一体形成されることを特徴とするセパレータである。

本発明に従えば、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであり、セパレータは、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有する。この分離部とシール部とはプレス加工などの塑性変形加工によって一体形成される。

WO 2005/045971

4

PCT/JP2004/016521

これにより、従来必要であった、Ｏリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができる。

また本発明は、金属板からなることを特徴とする。

本発明に従えば、金属板であることから、容易に塑性変形加工を行うことができる。

また本発明は、分離部には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行で、互いに平行な複数の凹形状の流路溝が形成されることを特徴とする。

また本発明は、シール部には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部が形成されることを特徴とする。

また本発明は、分離部とシール部とはプレス加工によって形成されることを特徴とする。

本発明に従えば、分離部には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行で、互いに平行な複数の凹形状の流路溝が形成され、シール部には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部が形成される。また、分離部およびシール部はプレス加工によって形成される。

このように、流路溝およびシール突部を形成するだけでよいので、容易に塑性変形加工を行うことができる。

また本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とが一体化されたセパレータであって、

シール部に相当する領域には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって前記電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有することを特徴とするセパレータである。

また本発明は、金属板からなることを特徴とする。

本発明に従えば、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分

離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とが一体化されたセパレータである。

セパレータは金属板からなり、シール部に相当する領域には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって前記電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有する。

これにより、従来必要であった、Ｏリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができる。

また本発明は、少なくとも前記シール突部が電解質層と接触する部分に、弾性体で構成される高分子弾性層が設けられることを特徴とする。

本発明に従えば、少なくとも前記シール突部が電解質層と接触する部分に、弾性体で構成される高分子弾性層が設けられるので、シール性がさらに向上する。

また本発明は、前記高分子弾性層の幅は1～10mmであり、厚みは1～100  $\mu$ mであることを特徴とする。

本発明に従えば、高分子弾性層を設ける領域がより小さな領域であっても十分なシール性を得ることができる。

また本発明は、前記シール突部を2以上有し、それぞれのシール突部の頂部と電解質層との当接箇所を仮想的に示す当接線が互いに平行であることを特徴とする。

本発明に従えば、さらにシール性を向上させることができる。

また本発明は、シール部および分離部以外の領域に、前記シール突部と同様に構成された補助突部を有し、補助突部は、セパレータを含む燃料電池の組み立て時に、電解質組立体との間に生じる面圧が均一に分布するように設けられることを特徴とする。

本発明に従えば、組み立て時にセパレータが傾くなどしてセパレータと電解質組立体との間で生じる接触不良などを防止することができる。

また本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を金属板で形成したセパレータであって、

金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成したことを特徴とするセパレ

ータである。

本発明に従えば、金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成することで、加工性および耐食性に優れたセパレータを提供することができる。

また本発明は、ゴムまたは合成樹脂は導電性を有することを特徴とする。

本発明に従えば、被覆層のゴムまたは合成樹脂が導電性を有することで、電解質組立体で発生した直流電力を、セパレータを通して取り出し、収集することができる。

また本発明は、被覆層は、接着層または表面処理層を介して金属板表面上に形成したことを特徴とする。

本発明に従えば、被覆層は、接着層または表面処理層を介して金属板表面上に形成する。被覆層と金属板との密着力が十分でない場合は、接着層または表面処理層を介してもよい。金属表面の酸化膜を除去する、金属表面を粗化するなどして表面処理層を形成し、被覆層を金属板表面上に形成することができる。また、被覆層としてゴムを用いる場合、接着剤としては、トリアジンチオール類、ポリアニリン類を用いることが好ましい。トリアジンチオール類は、金属板の表面付近に拡散することで接着層を形成し、ゴムとの接着を可能とする。さらにトリアジンチオール類導電性を示すので、電解質組立体で発生した直流電力を、セパレータを通して取り出し、収集することができる。

また本発明は、被覆層の電解質組立体と接触する領域に被覆層の導電性より高い導電性を有する高導電層を形成したことを特徴とする。

本発明に従えば、セパレータと電解質組立体との接触抵抗を低下させることができる。

また本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を金属板で形成するセパレータの製造方法であって、

金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する加工ステップと、

変形加工された金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成する被覆ステップとを有することを特徴とするセパレータの製造方法である。

また本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設

WO 2005/045971

7

PCT/JP2004/016521

けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を金属板で形成するセパレータの製造方法であって、

金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成する被覆ステップと、

被覆層が形成された金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する加工ステップとを有することを特徴とするセパレータの製造方法である。

本発明に従えば、まず加工ステップで、金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する。

次に被覆ステップで、変形加工された金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成する。

または、まず被覆ステップで、金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成し、次に加工ステップで、被覆層が形成された金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する。

これにより、加工性および耐食性に優れたセパレータを容易に製造することができる。

特に、生産性の観点から、加工ステップ、被覆ステップの順に形成する製造方法は、少量および中量生産に適しており、被覆ステップ、加工ステップの順に形成する製造方法は、大量生産に適している。

また本発明は、被覆層の電解質組立体と接触する領域に被覆層の導電性より高い導電性を有する高導電層を形成する高導電層形成ステップを有することを特徴とする。

本発明に従えば、セパレータと電解質組立体との接触抵抗を低下させることができる。

#### 図面の簡単な説明

[0004] 本発明の目的、特色、および利点は、下記の詳細な説明と図面とからより明確になるであろう。

図1は、固体高分子型燃料電池(Polymer Electrolyte Fuel Cell、略称PEFC)100を展開した状態で模式的に示した斜視図である。

図2は、セパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。

WO 2005/045971

8

PCT/JP2004/016521

図3は、ばね力が発生するためのシール部14の形状を説明する図である。

図4は、単位電池101を側面から見た概略図である。

図5は、第1の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図6は、第1の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図7は、第2の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図8は、第3の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図9は、第3の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図10は、第4の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図11は、第5の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図12は、第5の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図13は、第6の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図14は、第7の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図15は、他の実施形態であるセパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。

図16は、他の実施形態であるセパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。

図17は、セパレータ1aを含む単位電池102の水平断面図である。

図18は、第8の実施形態におけるシール部14aの要部拡大図である。

図19は、第9の実施形態におけるシール部14aの要部拡大図である。

図20は、第10の実施形態におけるシール部14aの要部拡大図である。

図21は、単位電池101を側面から見た概略図である。

### 発明を実施するための最良の形態

- [0005] 図1は、固体高分子型燃料電池(Polymer Electrolyte Fuel Cell、略称PEFC)100を展開した状態で模式的に示した斜視図である。PEFC100は、セパレータ1、燃料電池セル2、集電板3、絶縁シート4、エンドフランジ5、電極配線12を有する。PEFC100は、高電圧、高出力を得るために、複数の燃料電池セル2を直列に接続した、いわゆるスタック状態で構成される。このスタック状態を構成するためには、燃料電池セル2間にセパレータを配置し、各燃料電池セル2に対して水素および酸素の供



給と、発生した電気の回収とを行う。したがって、図1に示すように、燃料電池セル2とセパレータ1とが交互に配置される。この配置の最外層にはセパレータ1が配置され、セパレータ1のさらに外側には集電板3が設けられる。集電板3は、各セパレータ1で回収された電気を集めて取り出すために設けられ、電極配線12が接続されている。絶縁シート4は、集電板3とエンドフランジ5との間に設けられ、集電板3からエンドフランジ5に電流が漏れるのを防止している。エンドフランジ5は、複数の燃料電池セル2をスタック状態に保持するためのケースである。

エンドフランジ5には、水素ガス供給口6、冷却水供給口7、酸素ガス供給口8、水素ガス排出口9、冷却水排出口10および酸素ガス排出口11が形成されている。各供給口から供給されたガスおよび水の流体は、燃料電池セル2の積層方向に貫通する各往路を通り最外層のセパレータ1で折り返し、各復路を通して各排出口から排出される。

往路および復路は、各セパレータ1で分岐しており、往路を流れる各流体は、セパレータ1によって形成された、燃料電池セル2の面方向に平行な流路を通して復路に流れ込む。水素ガスおよび酸素ガスは、燃料電池セル2で消費されるので、未反応ガスが復路を通して排出されることとなる。排出された未反応ガスは回収され、再度供給口から供給される。酸素ガス流路付近では酸素と水素との反応によって水が生成するので、排出された酸素ガスは水を含んでいる。排出された酸素ガスを再度供給するには水を除去する必要がある。

燃料ガスである水素ガスおよび酸化剤ガスである酸素ガスは、それぞれ水素および酸素のみからなるガスである必要はなく、水素、酸素以外にも、接触する流路を劣化、変性させないガスであれば含んでいてもよい。たとえば、酸素ガスとして窒素を含む空気を用いてもよい。また、水素源としては水素ガスに限らずメタンガス、エチレンガス、天然ガスなどでもよく、エタノールなどでもよい。

図2は、セパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。単位電池101とは、1つの燃料電池セル2と、この両側に配置された2つのセパレータ1とからなり、水素および酸素を供給することで電力を発生させることができる最小の構成である。

電解質組立体である燃料電池セル2は、電解質媒体である高分子膜20と、高分子

WO 2005/045971

10

PCT/JP2004/016521

膜20の厚み方向表面に形成した触媒電極21とからなり、MEA (Membrane Electrode Assembly)とも呼ばれる。

高分子膜20は、水素イオン(プロトン)を透過するプロトン導電性電解質膜であり、パーフルオロスルホン酸樹脂膜(たとえば、デュポン社製、商品名 ナフィオン)がよく用いられる。

触媒電極21は、高分子膜20の厚み方向表面に、プラチナ、ルテニウムなどの触媒金属を含むカーボン層として積層される。触媒電極21に水素ガス、酸素ガスが供給されると、触媒電極21と高分子膜20との界面で電気化学反応が生じて直流電力が発生する。

高分子膜20は、厚みが約0.1mmであり、触媒電極21は含有する触媒金属などによっても変わるが、数 $\mu$ mの厚みで形成される。

セパレータ1は、水素ガスおよび酸素ガスの流路を分離する分離部13と、外周部に設けられ、水素ガスおよび酸素ガスの漏出を防ぐシール部14とを有している。本実施形態では、触媒電極21は、高分子膜20の全面に形成されているのではなく、外周の幅1〜20mm、好ましくは5〜10mmにわたって高分子膜20が表面に露出している。セパレータ1の分離部13は、触媒電極21が形成されている領域に対向する領域に形成され、シール部14は、高分子膜20が露出している領域に対向する領域に形成される。

セパレータ1の主な材質として、平板状の金属薄板を用いる。たとえば、鉄、アルミニウム、チタンなどの金属薄板、特にステンレス(たとえばSUS304など)鋼板、SPC C(一般用冷間圧延鋼板)、耐食性鋼板が好ましい。ステンレス鋼板については、表面処理されたものを使用することができる。たとえば、表面を酸洗処理、電解エッチング処理したもの、導電性介在物を含むもの、BA皮膜を形成したもの、イオンプレーティング加工により導電性化合物をコーティングしたものなどが使用できる。また、結晶組織を超微細化した高耐食性ステンレス鋼板なども使用できる。

上記のような金属薄板を塑性変形加工、たとえばプレス加工することによって、分離部13とシール部14とを一体形成することができる。なお、耐熱性を向上させるために、プレス加工後に、BH(Baked Hardening)処理を施したものが好ましい。

分離部13には、触媒電極21の形成面に平行で、互いに平行な複数の流路溝が形成されている。この流路溝は、ガスの流れ方向に垂直な断面が凹形状となっている。流路溝は、分離壁15と電極接触壁16とからなり、分離壁15、電極接触壁16および触媒電極21で囲まれた空間が水素ガス流路17および酸素ガス流路18となる。分離壁15は、水素ガスと酸素ガスが混合しないように水素ガス流路17と酸素ガス流路18とを隔てる。電極接触壁16は、触媒電極21に接触し、高分子膜20と触媒電極21との界面で発生した直流電力を直流電流として取り出し、分離壁15、他の電極接触壁16などを通して集電板に収集される。

互いに隣接する流路溝は、開放面が逆向きとなるように形成されており、これに応じて、水素ガス流路17および酸素ガス流路18を互いに隣接するように設定する。すなわち、同一の触媒電極21には同一のガスが接触するようにガス流路を設定する。さらに、1つの単位電池101を構成する2つのセパレータ1は、図2に示すように、流路溝の開放部が、燃料電池セル2を挟んで対向するように配置される。すなわち、2つのセパレータ1は、燃料電池セル2の中心を対称面として面対称の関係となるように配置される。ただし、ガス流路の設定は、面対称の関係ではなく、燃料電池セル2を挟んで対向する流路溝が、異なるガスのガス流路を形成するように設定する。たとえば、図2に示すように、燃料電池セル2を挟んで対向するガス流路は、一方が水素ガス流路17であり、もう一方が酸素ガス流路18である。

以上のようにセパレータ1を配置し、ガス流路を設定することで、電力を発生させることができる。

なお、流路溝と触媒電極21とによって形成された流路には、水素ガスおよび酸素ガスに限らず、冷却水を流してもよい。冷却水を流す場合は、燃料電池セル2を挟んで対向する流路溝のいずれにも流すことが好ましい。

シール部14には、触媒電極21の形成面に平行に延びるシール突部が形成される。このシール突部は、ガスの流れ方向に垂直な断面が逆U字形状または逆V字形状となっている。シール突部の頂部19は、ばね力によって、露出した高分子膜20に圧接される。この圧接位置でシールされ、水素ガスおよび酸素ガスの漏出を防ぐことができる。また、シール突部を逆U字形状または逆V字形状とすることで、頂部19の膜

接触面積を小さくし、Oリングと同様の高圧シールを実現している。

シール突部の頂部19を、ばね力によって高分子膜20に圧接するには、高分子膜20と接触しない状態、すなわちPEFC1を組み立てる前の状態のセパレータ1において、シール突部の頂部19の位置が、PEFC1が組み立てられ、高分子膜20と接触する位置よりさらに高分子膜20側となるように予めシール部14を形成する。具体的には、図3Aに示すように、PEFC1が組み立てられた状態では、シール突部の頂部19の位置は、触媒電極21との仮想接触面Aを基準とすると、触媒電極21との接触面と頂部19との距離が触媒電極21の厚み $t_1$ となるような位置になる。したがって、PEFC1が組み立てられる以前の状態では、図3Bに示すように、シール突部の頂部19の位置は、触媒電極21との接触面との距離が $t_1$ より大きな $t_2$ となるように形成すればよい。分離部13とシール突部との接続部分がばねとして働くので、組み立て時に頂部19が高分子膜に圧接する際の圧力は、このばね力と接触面積によって決まる。ばね力は、フックの法則に従い、ばね定数(弾性定数)に変位量を掛けたものとなる。セパレータ1においては、ばね定数は、セパレータ1の材質およびシール部14の形状とで決まる。変位量は、 $\Delta t = t_2 - t_1$ である。したがって、材質と形状とを予め決定し、ばね定数を決定した状態で、プレス加工時に $t_2$ を変えることで、シール圧力を容易に調整することができる。最適なシール圧力を実現するために、材質および形状を変更してもよいことは言うまでもない。

前述のように、燃料電池セル2を挟む2つのセパレータ1は、面对称の関係となるように配置されるので、頂部19による圧接位置も、燃料電池セル2の中心を対称面として面对称の関係となる。頂部19の圧接位置が対向する位置となることで、シール性が向上する。なお、前述のBH処理によって、シール部14の応力緩和を小さくし、シール性を保持することが可能である。

図4は、単位電池101を側面から見た概略図である。中央部に分離部13が設けられ、外周部にシール部14が設けられている。なお、図4では、分離部13およびシール部14の詳細な形状は省略している。シール部14では、シール突部の頂部19が高分子膜20に当接しており、この当接箇所を仮想的に示す当接線であるシールラインLが分離部13を取り囲むことで水素ガスおよび酸素ガスの漏出を防いでいる。

さらに、図2の水平断面図に示すように、シール突部の頂部19よりさらに外周部の頂部19aが、隣接する燃料電池セルに当接してシールすることでさらにシール性が向上する。この頂部19aによるシールラインは、頂部19によるシールラインと平行であり隣接している。

図5は、第1の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30からなり、シール部14では、金属薄板30が高分子膜20に接触してシールしている。

図6は、第1の実施形態における分離部13の要部拡大図である。分離部13では、金属薄板30触媒電極21に接触して、高分子膜20と触媒電極21との界面で発生した直流電力を直流電流として取り出し、セパレータ1内を通して集電板に収集される。

図7は、第2の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30からなり、シール部14では、シール突部の高分子膜20に接触する部分に高分子弾性層40が設けられ、高分子弾性層40が高分子膜20に当接してシールしている構成が第1の実施形態の構成と異なっている。

これにより、シール性がさらに向上し、従来必要であった、Oリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができる。

さらに、このシール突部によって、高分子弾性層40が薄層であってもシール機能を発揮し、応力緩和量が極めて低くなるという効果が得られる。

高分子弾性層40のシールライン方向幅Wは、1〜10mmが好ましく、さら好ましくは2〜7mmである。また、層厚みtは、1〜100  $\mu$ mが好ましく、さら好ましくは2〜50  $\mu$ mである。このような領域に高分子弾性層40を設けることで、より小さな領域であっても十分なシール性を得ることができる。

金属薄板30を高分子膜20に直接に接触させると、シール突部の頂部が変形しているような場合に、変形部分と高分子膜20表面との間に微小な隙間が生じ、この隙間から流体が漏出するおそれがある。シール部14において、弾性体である高分子弾性層40を設けると、ばね力によって頂部19が圧接されることにより接触部分が変形し

、高分子膜20表面との間に隙間が生じないのでシール性が向上する。

高分子弾性層40は、ゴムまたは合成樹脂からなり、ゴムとしては、たとえば、イソプレングム、ブタジエンゴム、スチレン-ブタジエンゴム、ブチルゴム、エチレン-プロピレンゴム、フッ素ゴム、シリコンゴムおよびニトリルゴムなどの汎用ゴム、耐ガス透過性および耐熱性を有するエピクロロヒドリンゴムなどを使用することができる。特に、耐熱性、耐酸性に優れたアリル系付加重合型ポリイソブチレンが好ましい。

また、合成樹脂としては、エポキシ樹脂、ウレタン-アクリレート樹脂、ポリアミド樹脂、シリコン樹脂および含フッ素樹脂などを使用することができる。特に、耐腐食性に優れた含フッ素樹脂が好ましく、たとえば、PTFE(ポリテトラフルオロエチレン)、PFA(テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体)、FEP(テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体)、EPE(テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体)、ETFE(テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体)、PCTFE(ポリクロロトリフルオロエチレン)、ECTFE(クロロトリフルオロエチレン-エチレン共重合体)、PVD F(ポリフッ化ビニリデン)、PVF(ポリビニルフルオリド)、THV(テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体)、VDF-HFP(フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体)、TFE-P(フッ化ビニリデン-プロピレン共重合体)などが好ましい。

高分子弾性層40は、たとえば、金属薄板30を酸化処理するなどして表面粗化し、アンカー効果によって密着させるか、フェノール樹脂、レゾルシン樹脂、シリコン樹脂およびポリウレタンなどの樹脂系接着剤、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリベンズイミダゾール、ポリオキサジアゾールなどの耐熱性構造用接着剤、 $\alpha$ -シアノアクリレートなどの瞬間接着剤、ならびに熱硬化性樹脂(エポキシ樹脂、フェノール樹脂など)に、脆性を緩和するために熱可塑性樹脂(ナイロン、アセタール樹脂など)やエラストマー(ニトリルゴム、シリコンゴムなど)を混合したナイロン-エポキシ樹脂、ナイロン-フェノール樹脂などの接着剤を用いればよい。

なお、高分子弾性層40は、金属薄板30に接着する必要はなく、低度の付着、粘着、弱接着、強接着と要求条件によって適宜選択すればよい。低度の付着であっても、

締め付け面圧が適性であれば十分なシール機能を発揮する。しかしながら、締め付け面圧以上の圧力が締め付け方向に対して横方向から加えられると、高分子弾性層40の横ずれ、脱落などが生じてしまうため、表面粗化も行うことが好ましい。

図8は、第3の実施形態における分離部13の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30および被覆層31からなり、被覆層31を形成して金属薄板30の表面を被覆している。分離部13では、被覆層31が触媒電極21に接触して、高分子膜20と触媒電極21との界面で発生した直流電力を直流電流として取り出し、セパレータ1内を通して集電板に収集される。被覆層31は、ゴムまたは合成樹脂からなり、導電性を有することが必要であるので、ゴムとしては、たとえば、イソプレンゴム、ブタジエンゴム、スチレン-ブタジエンゴム、ブチルゴムおよびエチレン-プロピレンゴムなどの汎用ゴム、耐ガス透過性および耐熱性を有するエポクロロヒドリンゴムなどの特殊ゴムにカーボンフィラーを添加して導電性を付与したものを使用することができる。特に、アリル系付加重合型ポリイソブチレンにカーボンフィラーを添加したものが好ましい。

また、合成樹脂としては、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、含フッ素樹脂などにカーボンフィラーを添加して導電性を付与したものを使用することができる。特に、高分子弾性層40に用いたものと同様に、耐腐食性に優れた含フッ素樹脂が好ましく、これにカーボンフィラーを添加したものが好ましい。

金属薄板30表面への被覆層31の被覆は、たとえば、金属薄板30を酸化処理などにより表面粗化して表面処理層を形成し、アンカー効果によって密着性を向上させればよい。

図9は、第3の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。シール部14では、被覆層31が高分子膜20に接触してシールしている。

金属薄板30が高分子膜20に接触する場合、シール突部の頂部19が変形していると、変形部分と高分子膜20表面との間に微小な隙間が生じ、この隙間から流体が漏出するおそれがある。これに対して、被覆層31は、ゴムなどの弾性体であり、ばね力によって頂部19に圧接されることで接触部分が変形し、隙間が生じないのでシール性が向上する。

図10は、第4の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30および被覆層31で構成され、被覆層31を形成して金属薄板30の表面を被覆している。シール部14では、第1の実施形態と同様にシール突部の高分子膜20に接触する部分に高分子弾性層40が設けられ、高分子弾性層40が高分子膜20に当接してシールしている構成が第3の実施形態の構成と異なっている。高分子弾性層40については、第2の実施形態と同様の材料を用いている。

図11は、第5の実施形態における分離部13の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30、被覆層31および接着層32からなり、接着層32を介して金属薄板30の表面に被覆層31を形成している。分離部13では、被覆層31が触媒電極21に接触して、発生した直流電力を直流電流として取り出し収集する。被覆層31には、第3の実施形態と同様のゴムを使用することができる。

接着層32は、金属薄板30表面に対してトリアジンチオール類に代表される導電性カップリング剤によるコーティング、ポリアニリン類に代表される導電性ポリマーによるドーピング処理されたコーティングを行うことにより、金属表面に拡散層として形成される。金属表面に拡散したトリアジンチオール類、ポリアニリン類は、導電性を示すので、樹脂層32との導電性を確保し、発生した直流電力を直流電流として取り出すことができる。

図12は、第5の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。シール部14では、被覆層31が高分子膜20に接触してシールしている。被覆層31および接着層32については、分離部13と同様の材料を用いている。

図13は、第6の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30、被覆層31および接着層32からなり、接着層32を介して金属薄板30の表面に被覆層31を形成している。シール部14では、シール突部の高分子膜20に接触する部分に高分子弾性層40が設けられ、高分子弾性層40が高分子膜20に当接してシールしている構成が第5の実施形態の構成と異なっている。高分子弾性層40については、第2の実施形態と同様の材料を用いている。

図14は、第7の実施形態における分離部13の要部拡大図である。本実施形態で



は、セパレータ1は、金属薄板30、被覆層31、接着層32および高導電層33からなり、被覆層31の触媒電極21と接触する領域に、被覆層31の導電性より高い導電性を有する高導電層33を形成している。

被覆層31と触媒電極21との接触抵抗が高く電力の回収率が小さい場合は、触媒電極21との接触領域に、高導電層33を形成することで接触抵抗を低下させて回収率を向上させることができる。高導電層33には、反応性エラストマにナノカーบอนを添加したものを使用するのが好ましい。

図15は、他の実施形態であるセパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。図に示すように、単位電池101の一方のセパレータ1において、シール突部が、高分子膜20と面接触するように、シール突部の断面を台形形状としてもよい。また、図16に示すように、単位電池101の両方のセパレータ1において、シール突部が、高分子膜20と面接触するように、シール突部の断面を台形形状としてもよい。

図17は、セパレータ1aを含む単位電池102の水平断面図である。図2に示した単位電池101と同じ部位については同じ参照符号を付し、説明は省略する。以下では単位電池101と異なる部位について説明する。セパレータ1aは、分離部13とシール部14aとを有し、燃料電池セル2aは、高分子膜20と触媒電極21aとを有する。触媒電極21aは、上記の実施形態とは異なり、高分子膜20の全面に形成されている。したがって、シール部14aのシール突部の頂部19は、高分子膜20ではなく、触媒電極21aに圧接される。シール突部の頂部19を、ばね力によって触媒電極21aに圧接するには、触媒電極21と接触しない状態、すなわちPEFC1を組み立てる前の状態のセパレータ1において、シール突部の頂部19の位置が、触媒電極21との仮想接触面Aよりさらに触媒電極21側となるように予めシール部14を形成する。本実施形態は、図3における $t_1$ を0とした場合と同様である。したがって、上記の実施形態と同じく、プレス加工時に $t_2$ を変えることで、シール圧力を容易に調整することができる。

図18は、第8の実施形態におけるシール部14aの要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1aは、金属薄板30からなり、シール部14aでは、金属薄板30が触媒電極21に接触してシールしている。

図19は、第9の実施形態におけるシール部14aの要部拡大図である。本実施形態

では、セパレータ1aは、金属薄板30および被覆層31からなり、被覆層31を形成して金属薄板30の表面を被覆している。シール部14aでは、被覆層31が触媒電極21に接触してシールしている。被覆層31には、第3の実施形態と同様の材料が使用できる。

図20は、第10の実施形態におけるシール部14aの要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30、被覆層31および接着層32からなり、接着層32を介して金属薄板30の表面に被覆層31を形成している。シール部14では、被覆層31が触媒電極21に接触してシールしている。被覆層31には、第3の実施形態と同様の材料が使用でき、接着層32としては、第5の実施形態と同様の材料が使用できる。

図21は、単位電池101を側面から見た概略図である。分離部13は、必ずしも燃料電池セル2の全面にわたって設けられるとは限らず、図21に示したように、シールラインLが偏ってしまう場合がある。このような場合、組み立て時にセパレータ1と燃料電池セル2との間に生じる面圧の分布に偏りが生じ、分離部13での接触不良を生じることとなる。これを防止するために、シール部14以外の領域にもシール突部と同様の突部(補助突部)を設ける。図に示すように、補助突部が高分子膜20に当接する箇所を示す当接ラインMとシールラインLとが燃料電池セル2面内に均一に分布するように、補助突部を設けることによって、面圧の分布が均一となる。

次にセパレータ1の製造方法について説明する。

第1および第8の実施形態については、セパレータ1は、金属薄板30からなるので、プレス加工によって分離部13とシール部14とを一体形成する。具体的には、ビーディング加工により外周部にシール突部を形成するとともに、エンボス加工により中央部に流路溝を形成する。

第3、第5、第9および第10の実施形態については、主に2種類の製造方法で製造することができる。1つ目は、まず金属薄板30をプレス加工し、分離部13とシール部14とを一体形成する。具体的には、ビーディング加工により外周部にシール突部を形成するとともに、エンボス加工により中央部に流路溝を形成する。次に被覆層31であるゴムをコーティングする方法である。2つ目は、まず平板状の金属薄板にゴムをコ

ーティングした後、プレス加工を行う方法である。

第7の実施形態については、第3、第5、第9および第10の実施形態と同様にしてゴム被覆済みの状態とし、触媒電極21との接触領域にのみスプレー法、転写法、スクリーン印刷法およびステンシル印刷法などによって選択的にコーティングする。

さらに、上記の各実施形態では、130℃以上の温度で加熱処理を行い、金属薄板30を硬化させるとともにゴムの架橋を行う。

第2、第4および第6の実施形態についての製造方法は、主に以下の工程からなる。

#### (1) 金属薄板処理工程

シート状の金属薄板に対し、ゴムとの密着性を得るための処理を行う。処理方法には、前述の表面粗化による処理(第4の実施形態)、接着層を形成する処理(第6の実施形態)などがある。

#### (2) 型抜き加工処理

表面処理された金属薄板に対し、所定の外形およびガス経路を得るために、型抜き加工を行う。

#### (3) 被覆層形成処理

型抜き加工が施された金属薄板の表面に、予め導電性のカーボンフィラーなどを含有させた液状導電性ゴムをコーティングするか、グリーンシート状導電性ゴムを積層する。液状導電性ゴムには、たとえばポリイソブチレンゴムなどを用いる。なお、第2の実施形態は、被覆層を備えていないので、被覆層形成処理は製造工程から省略する。

#### (4) 高分子弾性層形成処理

金属薄板または被覆層のシール突部の頂部となる領域に、高分子弾性層を設ける。具体的には、高分子弾性層となるゴムまたは合成樹脂を溶剤に溶解させた溶解液を用いる方法と、ゴムまたは合成樹脂となるモノマー、オリゴマーを含む反応液を用いる方法の2種類の方法がある。

さらに、これらの溶解液または反応液を所定の領域に塗布する方法としては、たとえば、スクリーン印刷、凹版印刷、ステンシル印刷などの印刷方法を使用することが

できる。

#### (5) プレス加工処理

分離部13の流路溝とシール部14のシール突部とを形成するためにプレス加工を行う。プレス加工により、分離部13とシール部14を同時に形成することができる。

#### (6) 加硫処理

加熱により高分子弾性層および被覆層の加硫処理を行う。なお、プレス加工時に加熱することで、金属薄板のBH (Baked Hardening) 処理およびゴム層の架橋処理を同時に行うようにしてもよい。金属薄板をBH処理することによって、耐熱性を向上させるとともに、シール部14の応力緩和を小さくし、シール性を保持することが可能である。

以上のようにして得られたセパレータ1と燃料電池セル2とを交互に所定数配置し、その外側に集電板3、絶縁シート4を配置してエンドフランジ5で挟持し固定することによりPEFC100が得られる。

下記の実施例に示す条件で第2、第4および第6の実施形態に係るセパレータを作製した。

金属薄板は各実施例で共用し、たて10cm、よこ10cm、厚さ0.2mmのSUS304製薄板を用いた。また、サンドブラストによる表面粗化を行い、プレス加工により外周部にシール突部を形成し、中央部に分離溝を形成した。

#### (実施例1)

1液性加熱硬化型オレフィン系シール材(スリーボンド社製、商品名 スリーボンド1152)を、シール突部の頂部となる位置にスクリーン印刷で印刷する。120℃で40分間加熱硬化させ、層厚みが25  $\mu\text{m}$ 〜30  $\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。加熱硬化後、プレス加工によりシール突部を形成する。

#### (実施例2)

予めプレス加工によりシール突部を形成する。クロロスルホン化ポリエチレン、無機質フィラーおよび溶媒を混合したシール材(スリーボンド社製、商品名 スリーボンド1104)を、シール突部の頂部にスクリーン印刷で印刷し、加熱硬化させ、層厚みが15  $\mu\text{m}$ 〜20  $\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。

WO 2005/045971

21

PCT/JP2004/016521

### (実施例3)

予めプレス加工によりシール突部を形成する。光硬化性粘着材であるシリコンPS Aを、シール突部の頂部に針状ノズルで吐出し、光照射して硬化させ、層厚みが15  $\mu\text{m}$ 〜20  $\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。

### (実施例4)

SUS304薄板表面をサンドブラストで粗化し、ポリアニリンによるプライマー処理を施し、アリル系付加重合型ポリイソブチレンと、導電性カーボングラファイトとを混合したものを、厚さ50  $\mu\text{m}$ で塗布し、130℃で2時間加熱硬化させて被覆層を形成する。実施例1と同様に、1液性加熱硬化型オレフィン系シール材(スリーボンド社製、商品名 スリーボンド1152)を、シール突部の頂部となる位置にスクリーン印刷で印刷し、120℃で40分間加熱硬化させ、層厚みが25  $\mu\text{m}$ 〜30  $\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。加熱硬化後、プレス加工によりシール突部を形成する。

### (実施例5)

SUS304薄板表面をサンドブラストで粗化し、ポリアニリンによるプライマー処理を施し、アリル系付加重合型ポリイソブチレンと、導電性カーボングラファイトとを混合したものを、厚さ50  $\mu\text{m}$ で塗布し、130℃で2時間加熱硬化させて被覆層を形成する。プレス加工によりシール突部を形成する。クロロスルフォン化ポリエチレン、無機質ファイバーおよび溶媒を混合したシール材(スリーボンド社製、商品名 スリーボンド1104)を、シール突部の頂部にスクリーン印刷で印刷し、加熱硬化させ、層厚みが15  $\mu\text{m}$ 〜20  $\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。

### (比較例)

プレス加工により、SUS304薄板に流路溝を形成する。このときシール突部は形成しない。上記実施例でシール突部を形成した外周部に相当する部分に、厚さ1mmのポリイソブチレン系フラットシートガasketを設ける。

実施例1〜5および比較例についてシール試験を行った。シール試験は、セパレータを4枚積層し、厚み10mmの鋼材板で挟み込んでボルトにより積層方向に締め付ける。分離部に設けた注入孔から空気を注入し、漏れの有無を調べた。

実施例1〜5では空気漏れは全く無く、良好なシール性能を示した。これに対し、比

較例では空気漏れが発生した。

本発明は、その精神または主要な特徴から逸脱することなく、他のいろいろな形態で実施できる。したがって、前述の実施形態はあらゆる点で単なる例示に過ぎず、本発明の範囲は特許請求の範囲に示すものであって、明細書本文には何ら拘束されない。さらに特許請求の範囲に属する変形や変更は全て本発明の範囲内のものである。

### 産業上の利用可能性

[0006] 以上のように本発明によれば、従来必要であった、Ｏリング、ガスケットなどのシーล部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができる。

また本発明によれば、セパレータが金属板であることから、容易に塑性変形加工を行うことができる。

また本発明によれば、流路溝およびシーล突部を形成するだけでよいので、容易に塑性変形加工を行うことができる。

また本発明によれば、少なくとも前記シーล突部が電解質層と接触する部分に、弾性体で構成される高分子弾性層が設けられるので、シーล性がさらに向上する。

また本発明によれば、高分子弾性層を設ける領域がより小さな領域であっても十分なシーล性を得ることができる。

また本発明によれば、前記シーล突部を２以上有し、それぞれのシーล突部の頂部と電解質層との当接箇所を仮想的に示す当接線が互いに平行とすることで、さらにシーล性を向上させることができる。

また本発明によれば、組み立て時にセパレータが傾くなどしてセパレータと電解質組立体との間で生じる接触不良などを防止することができる。

また本発明によれば、金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成することで、加工性および耐食性に優れたセパレータを提供することができる。

また本発明によれば、被覆層のゴムまたは合成樹脂が導電性を有することで、電解質組立体で発生した直流電力を、セパレータを通して取り出し、収集することができる。

また本発明によれば、被覆層は、接着層または表面処理層を介して金属板表面上に形成する。被覆層と金属板との密着力が十分でない場合は、接着層または表面処理層を介してもよい。金属表面の酸化膜を除去する、金属表面を粗化するなどして表面処理層を形成し、被覆層を金属板表面上に形成することができる。また、被覆層としてゴムを用いる場合、接着剤としては、トリアジンチオール類、ポリアニリン類を用いることが好ましい。トリアジンチオール類は、金属板の表面付近に拡散することで接着層を形成し、ゴムとの接着を可能とする。さらにトリアジンチオール類導電性を示すので、電解質組立体で発生した直流電力を、セパレータを通して取り出し、収集することができる。

また本発明によれば、セパレータと電解質組立体との接触抵抗を低下させることができる。

また本発明によれば、まず加工ステップで、金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する。

次に被覆ステップで、変形加工された金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成する。

または、まず被覆ステップで、金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成し、次に加工ステップで、被覆層が形成された金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する。

これにより、加工性および耐食性に優れたセパレータを容易に製造することができる。

特に、生産性の観点から、加工ステップ、被覆ステップの順に形成する製造方法は、少量および中量生産に適しており、被覆ステップ、加工ステップの順に形成する製造方法は、大量生産に適している。

## 請求の範囲

- [1] 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、  
燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、  
外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、  
分離部とシール部とは塑性変形加工によって一体形成されることを特徴とするセパレータ。
- [2] 金属板からなることを特徴とする請求項1記載のセパレータ。
- [3] 分離部には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行で、互いに平行な複数の凹形状の流路溝が形成されることを特徴とする請求項1または2記載のセパレータ。
- [4] シール部には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部が形成されることを特徴とする請求項1または2記載のセパレータ。
- [5] 分離部とシール部とはプレス加工によって形成されることを特徴とする請求項1〜4のいずれか1つに記載のセパレータ。
- [6] 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とが一体化されたセパレータであって、  
シール部に相当する領域には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって前記電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有することを特徴とするセパレータ。
- [7] 金属板からなることを特徴とする請求項6記載のセパレータ。
- [8] 少なくとも前記シール突部が電解質層と接触する部分に、弾性体で構成される高分子弾性層が設けられることを特徴とする請求項6または7記載のセパレータ。
- [9] 前記高分子弾性層の幅は1〜10mmであり、厚みは1〜100  $\mu$ mであることを特徴とする請求項6〜8のいずれか1つに記載のセパレータ。
- [10] 前記シール突部を2以上有し、それぞれのシール突部の頂部と電解質層との当接



箇所を仮想的に示す当接線が互いに平行であることを特徴とする請求項6〜9のいずれか1つに記載のセパレータ。

- [11] シール部および分離部以外の領域に、前記シール突部と同様に構成された補助突部を有し、補助突部は、セパレータを含む燃料電池の組み立て時に、電解質組立体との間に生じる面圧が均一に分布するように設けられることを特徴とする請求項6〜10のいずれか1つに記載のセパレータ。
- [12] 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を金属板で形成したセパレータであって、  
金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成したことを特徴とするセパレータ。
- [13] ゴムまたは合成樹脂は導電性を有することを特徴とする請求項12記載のセパレータ。
- [14] 被覆層は、接着層または表面処理層を介して金属板表面上に形成したことを特徴とする請求項12または13記載のセパレータ。
- [15] 被覆層の電解質組立体と接触する領域に被覆層の導電性より高い導電性を有する高導電層を形成したことを特徴とする請求項12〜14のいずれか1つに記載のセパレータ。
- [16] 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を金属板で形成するセパレータの製造方法であって、  
金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する加工ステップと、  
変形加工された金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成する被覆ステップとを有することを特徴とするセパレータの製造方法。
- [17] 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を金属板で形成するセパレータの製造方法であって、  
金属板の表面にゴムまたは合成樹脂の被覆層を形成する被覆ステップと、

WO 2005/045971

26

PCT/JP2004/016521

被覆層が形成された金属板を塑性変形加工することによって分離部を形成する加工ステップとを有することを特徴とするセパレータの製造方法。

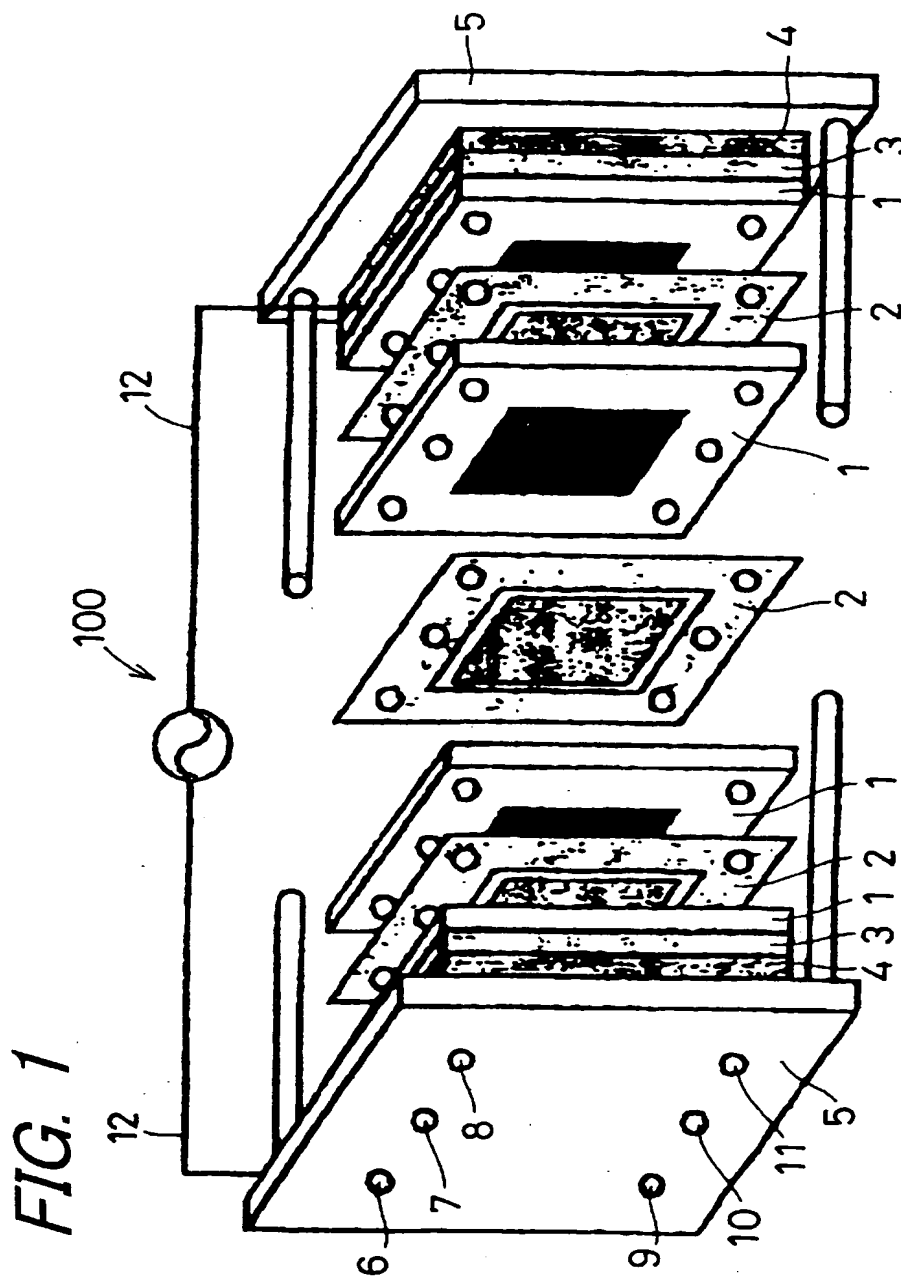
- [18] 被覆層の電解質組立体と接触する領域に被覆層の導電性より高い導電性を有する高導電層を形成する高導電層形成ステップを有することを特徴とする請求項16または17記載のセパレータの製造方法。

1/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図1]

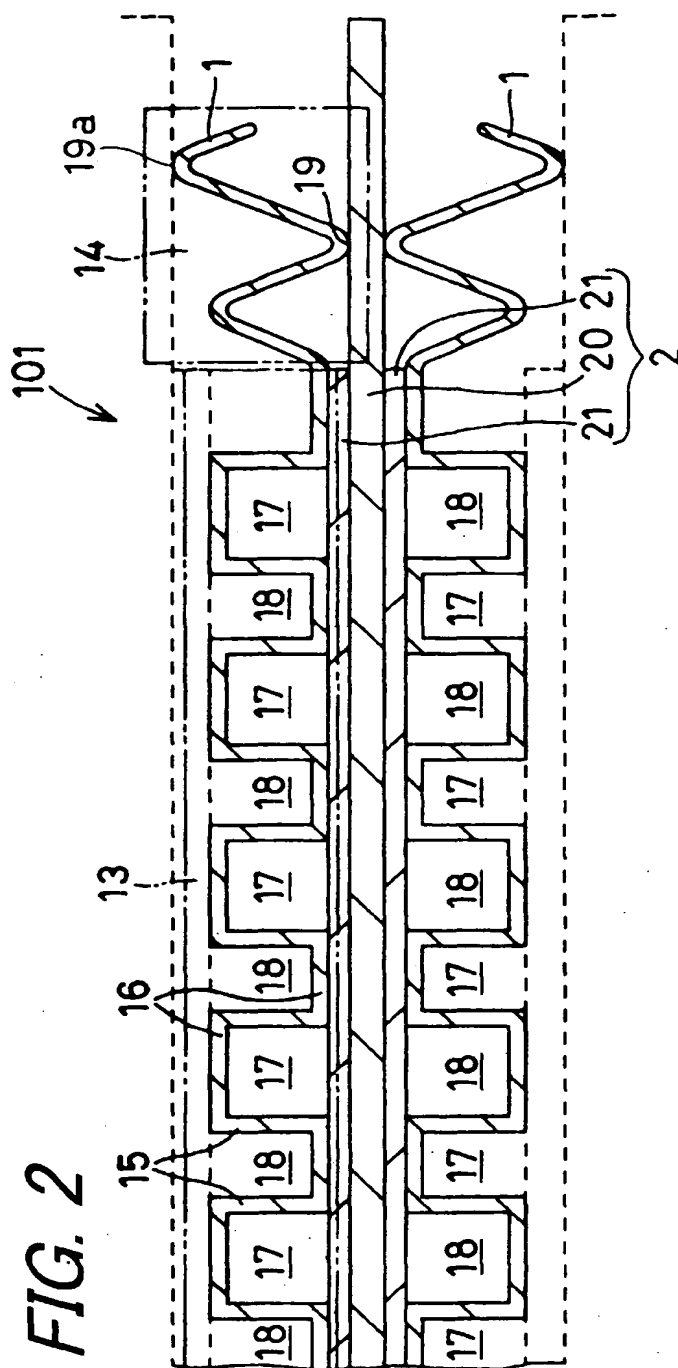


2/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図2]

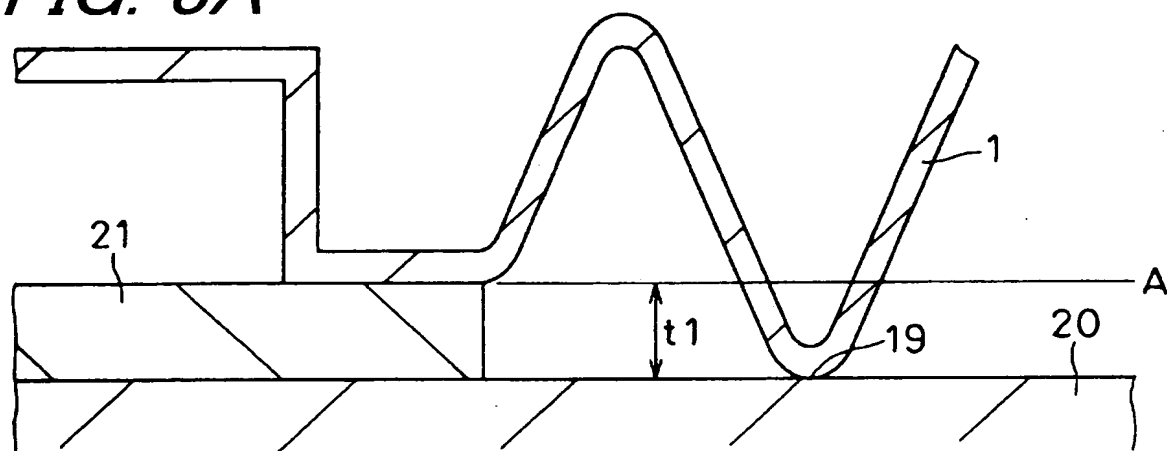
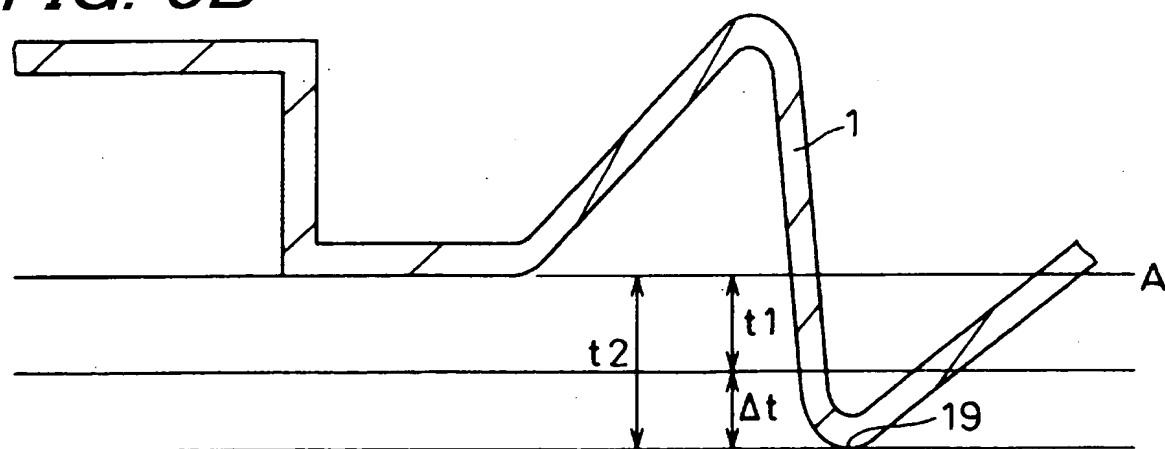


3/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図3]

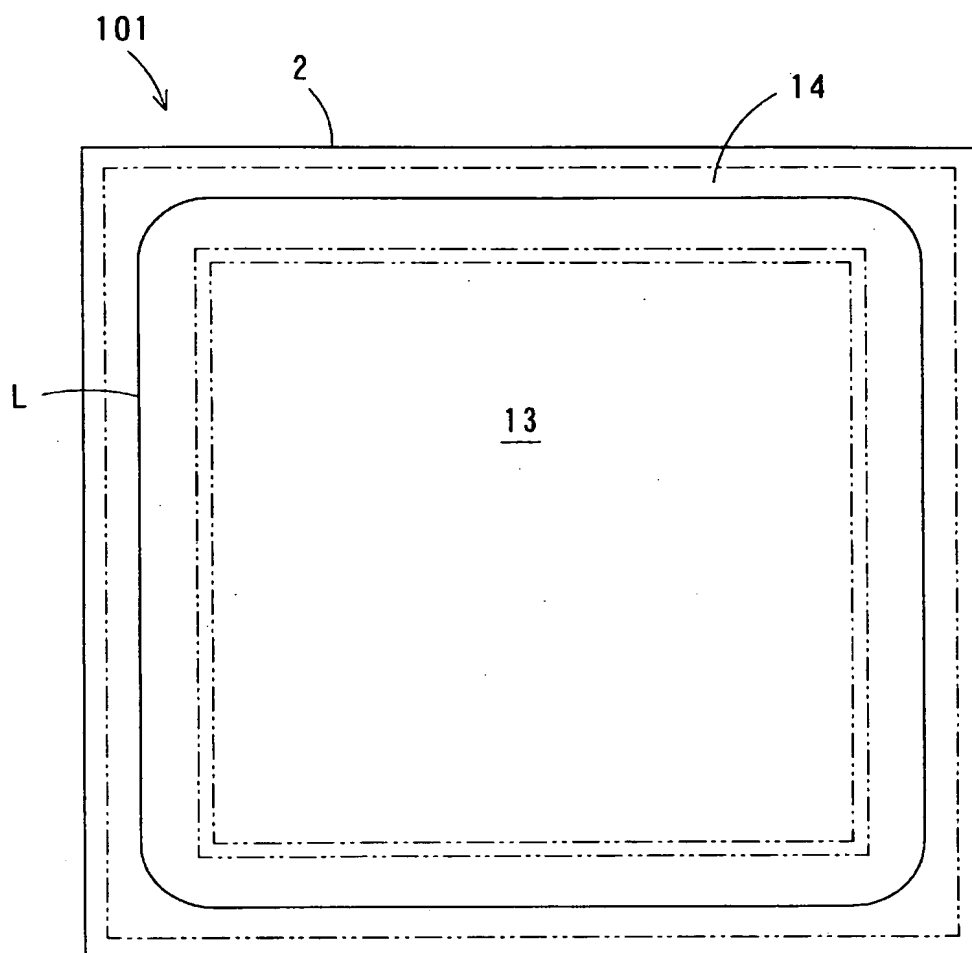
**FIG. 3A****FIG. 3B**

4/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図4]

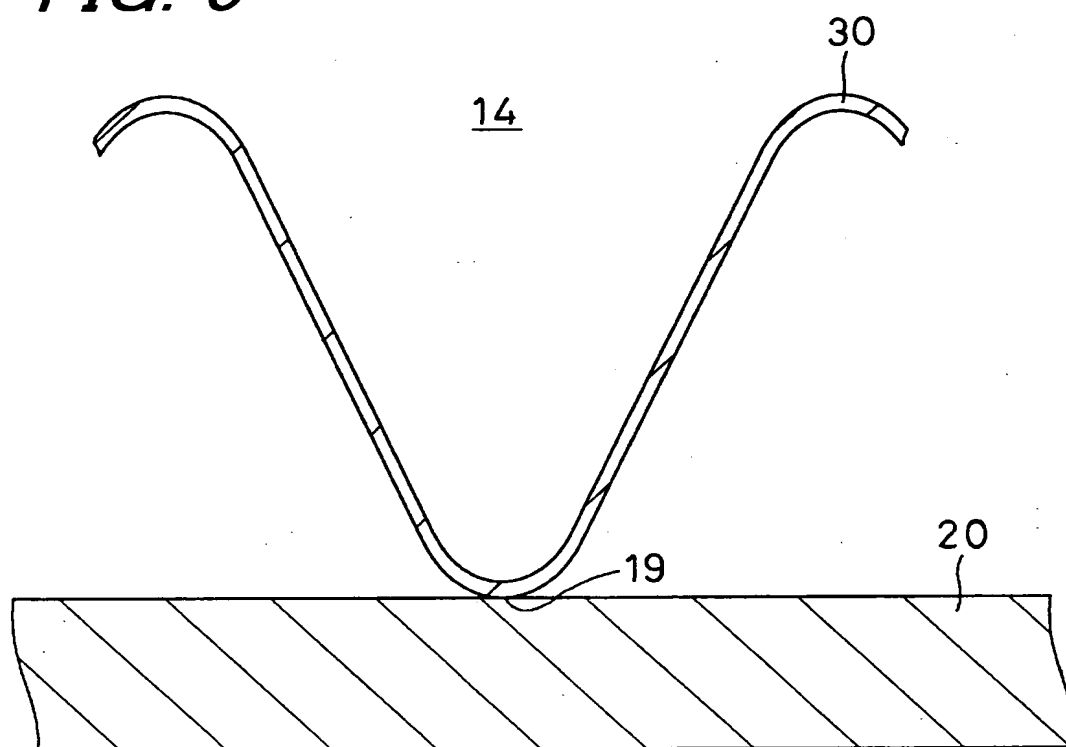
**FIG. 4**

5/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図5]

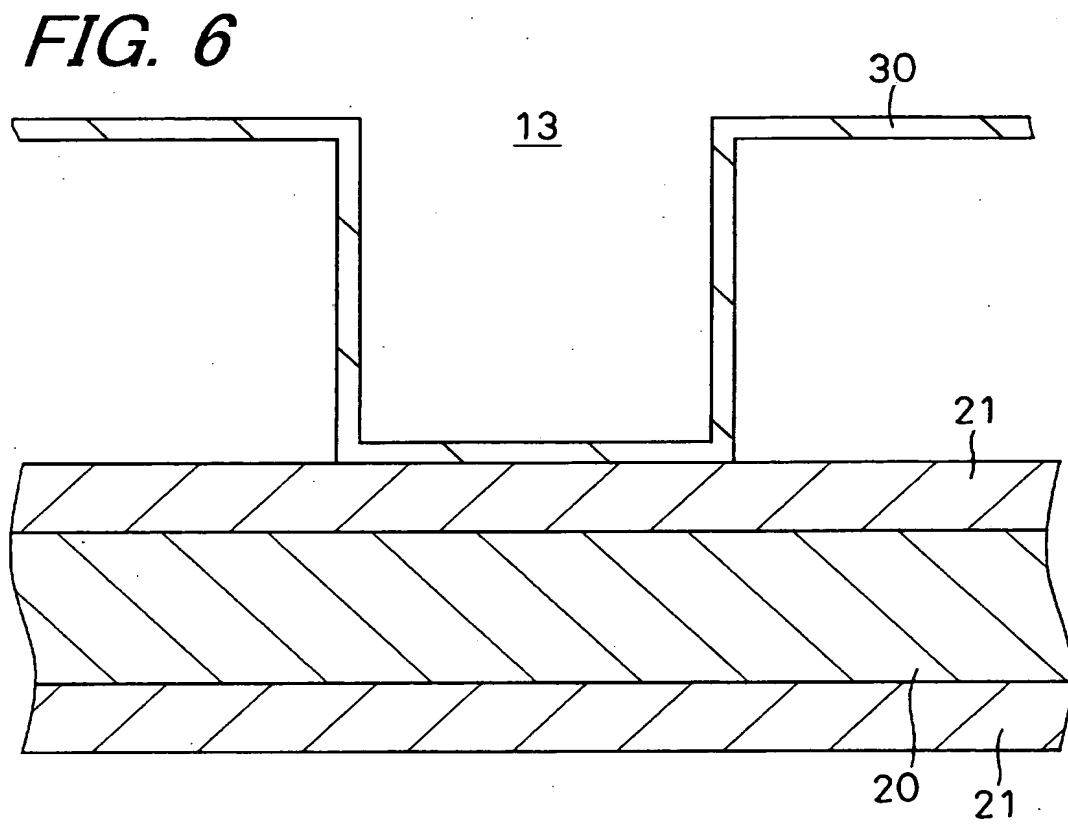
**FIG. 5**

6/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図6]



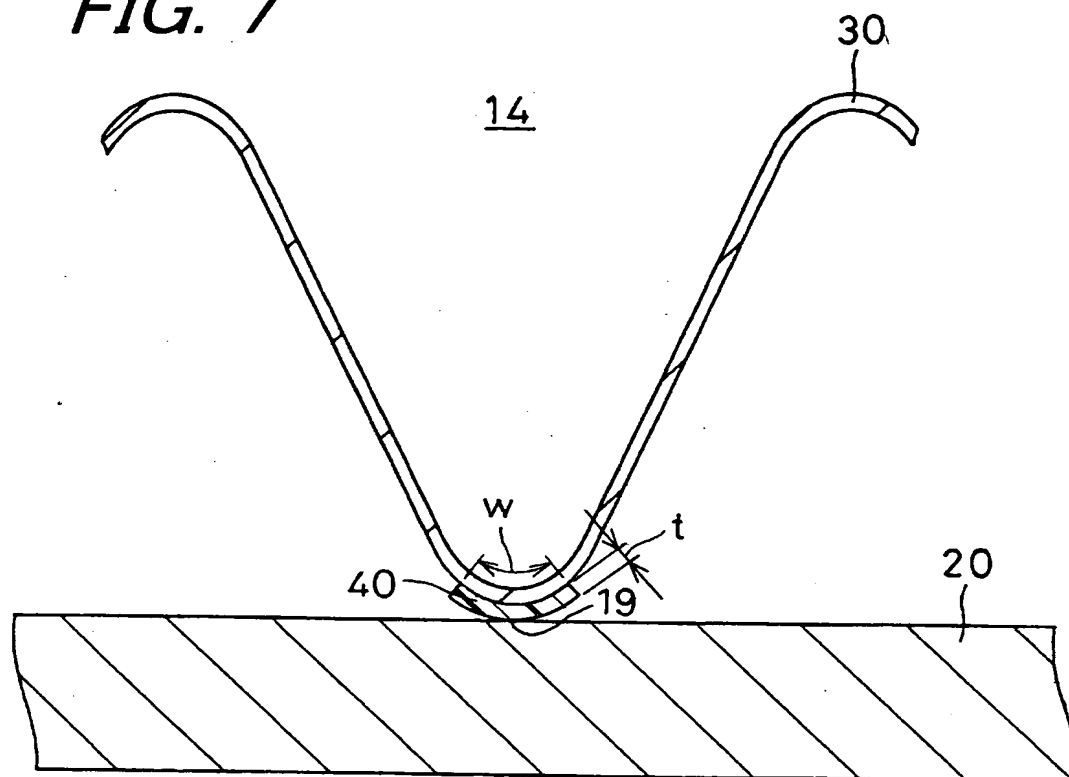


7/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図7]

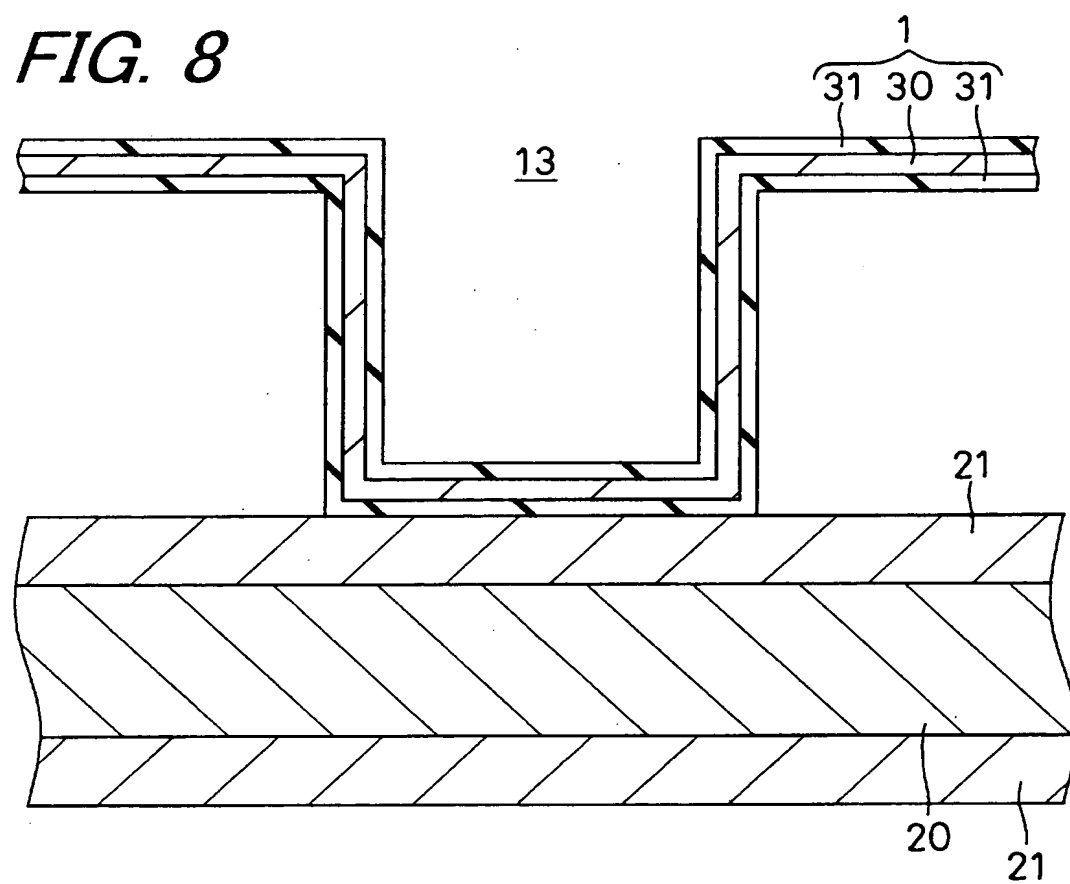
**FIG. 7**

8/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図8]

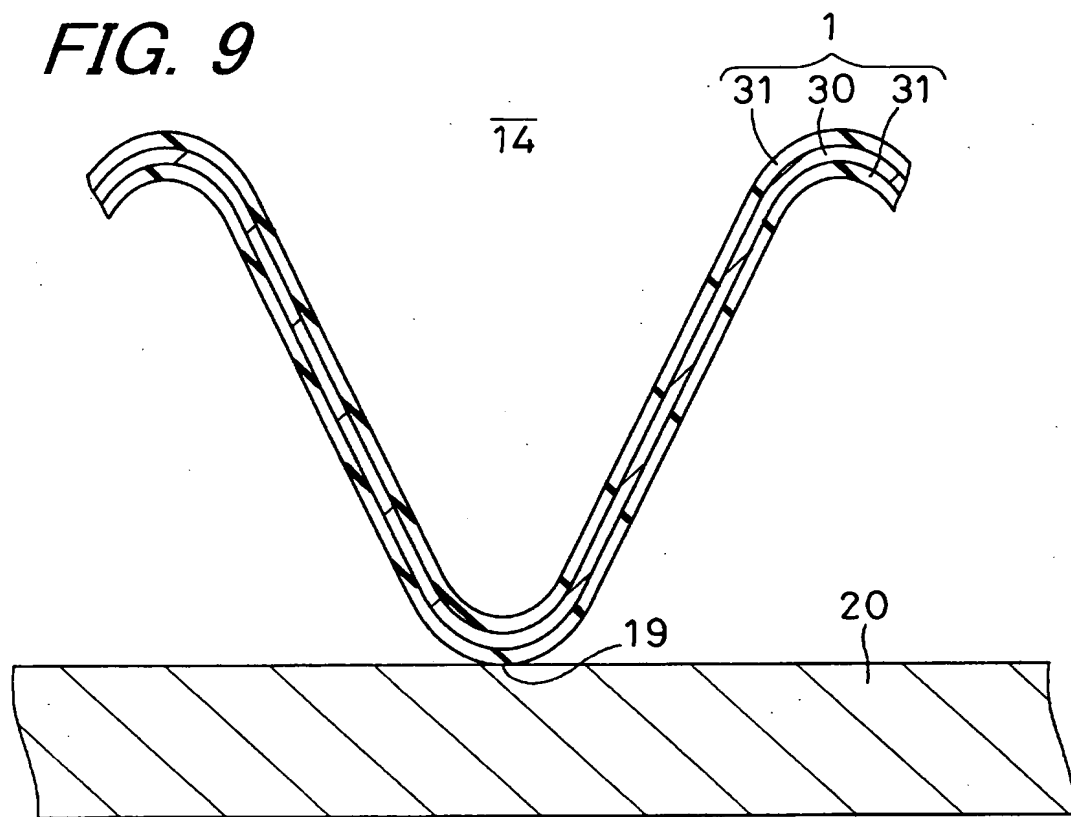


9/21

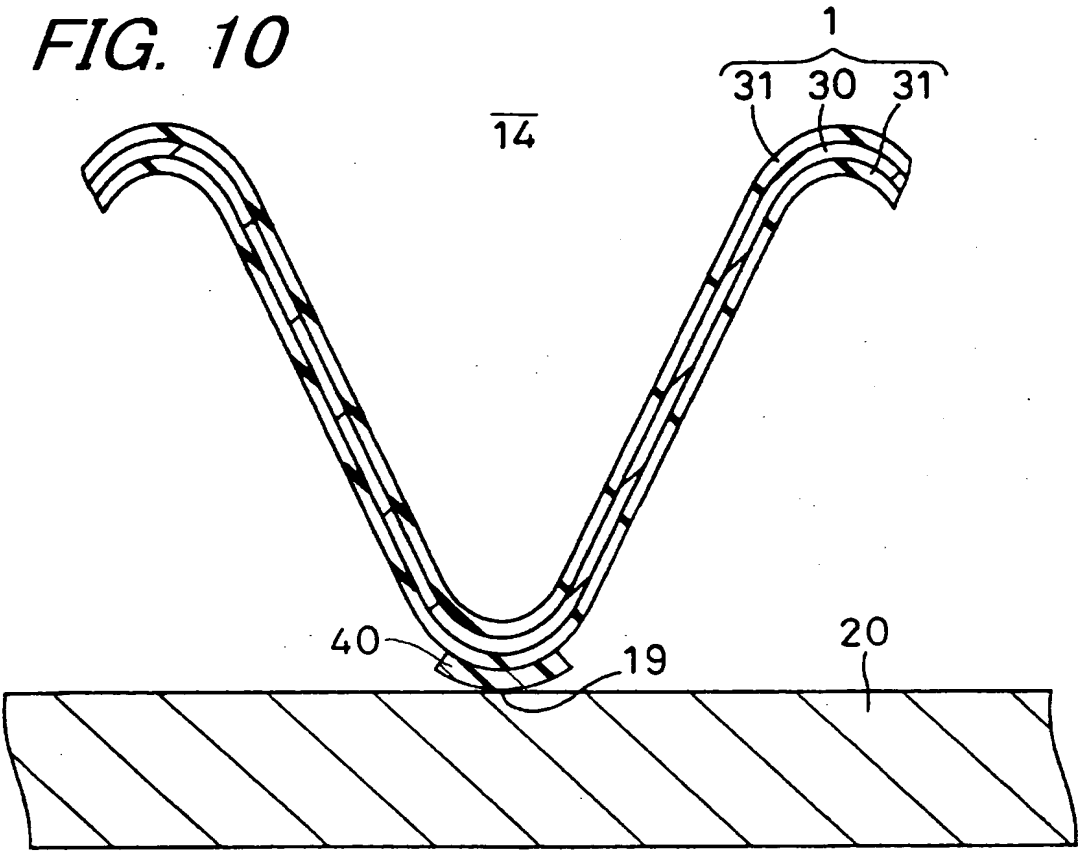
WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図9]



[図10]

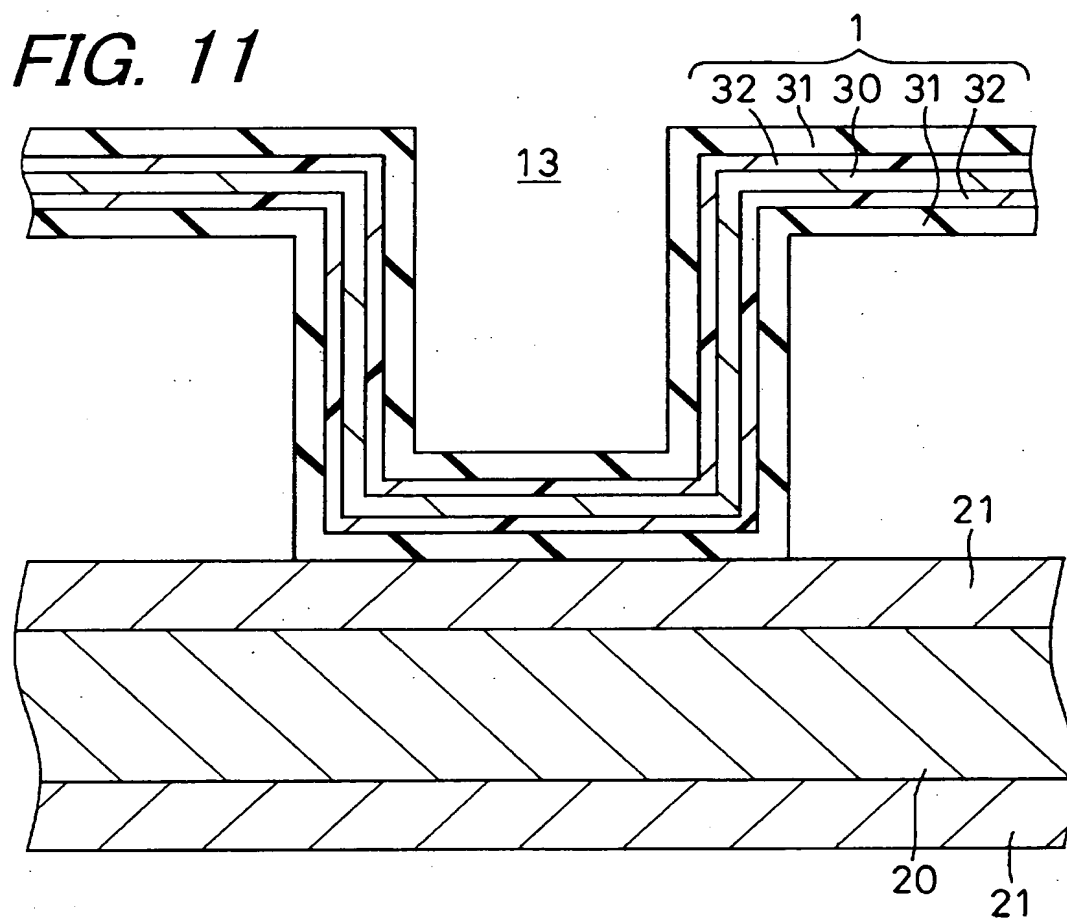


11/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図11]

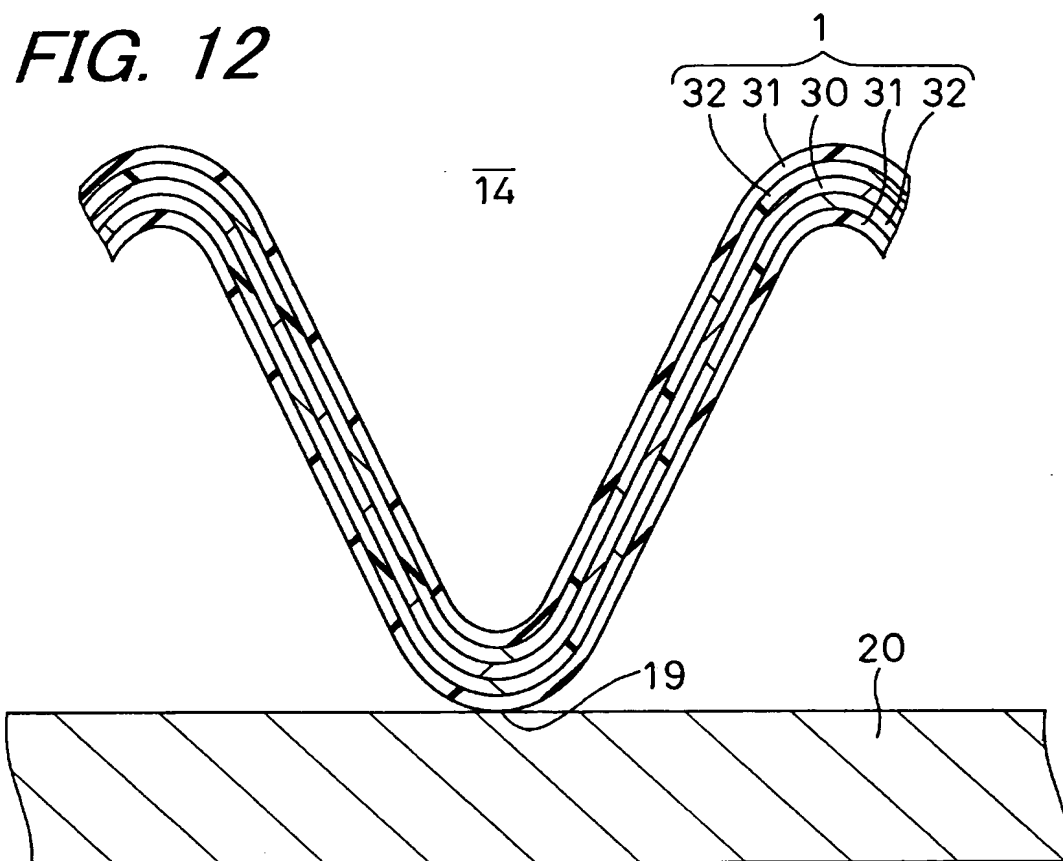


12/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図12]

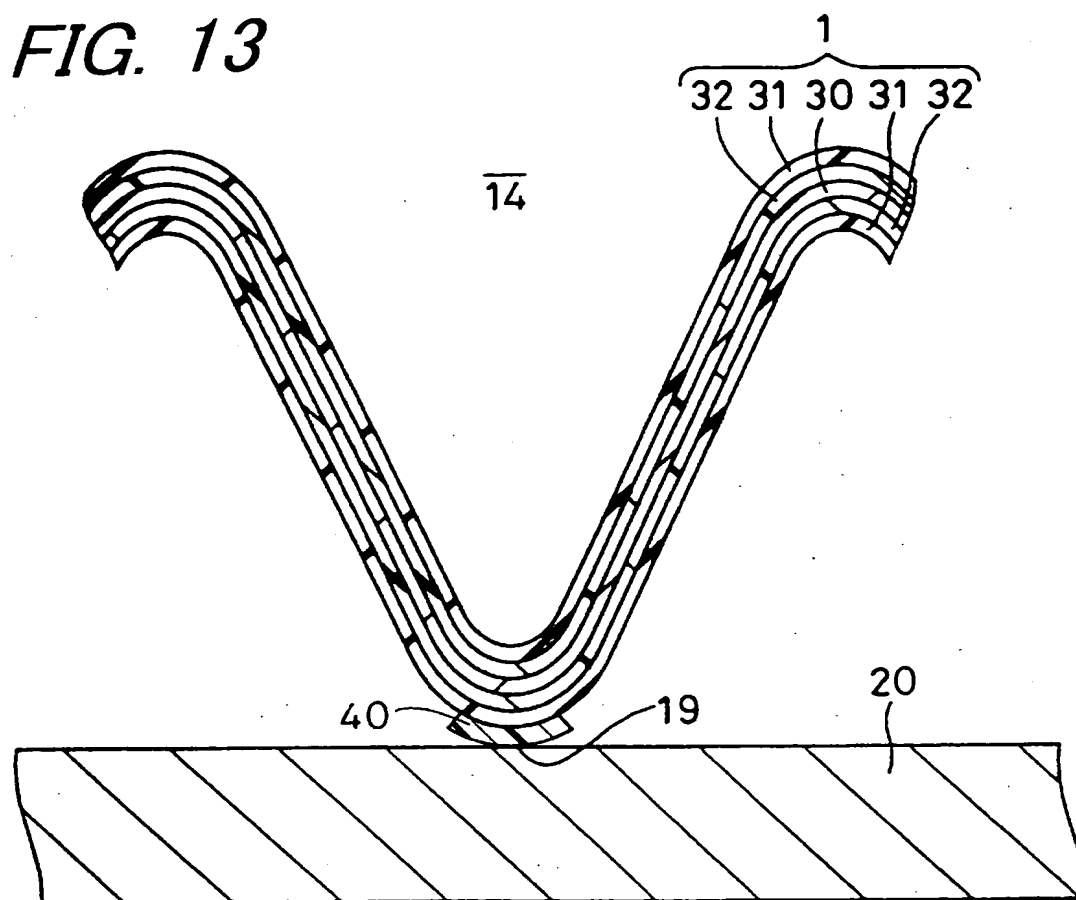


13/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図13]

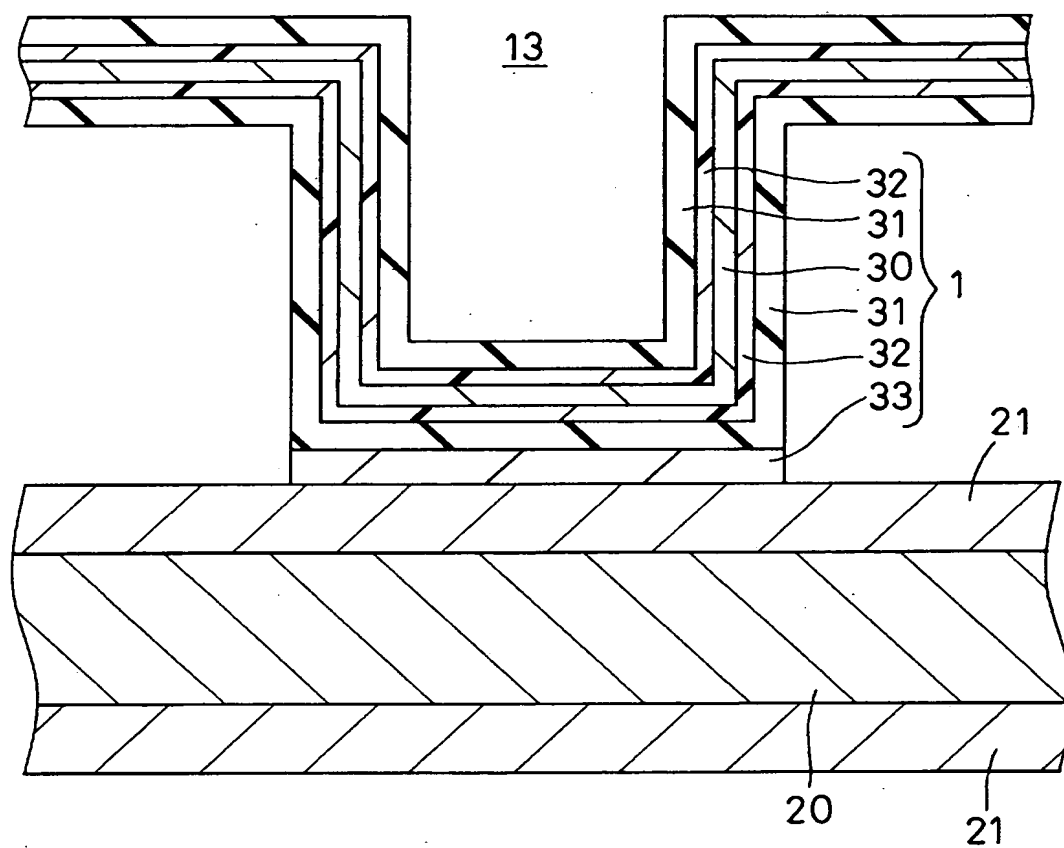


14/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図14]

**FIG. 14**



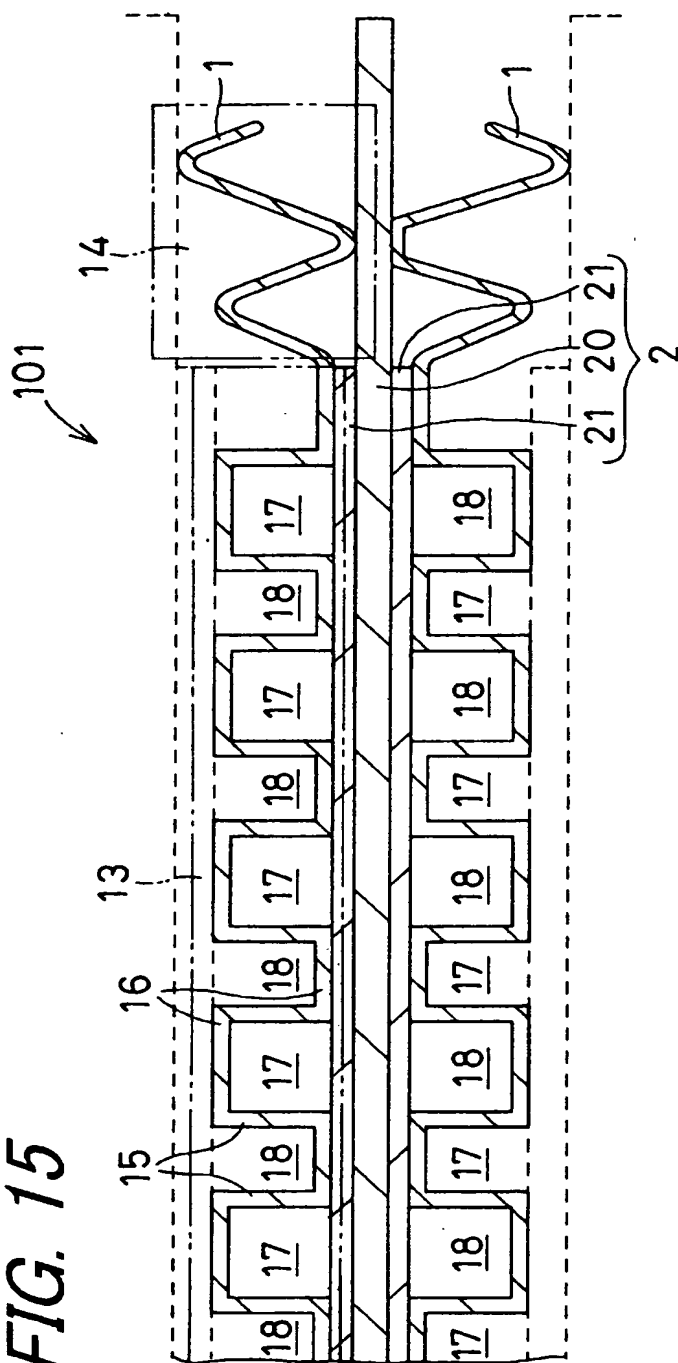
15/21

**WO 2005/045971**

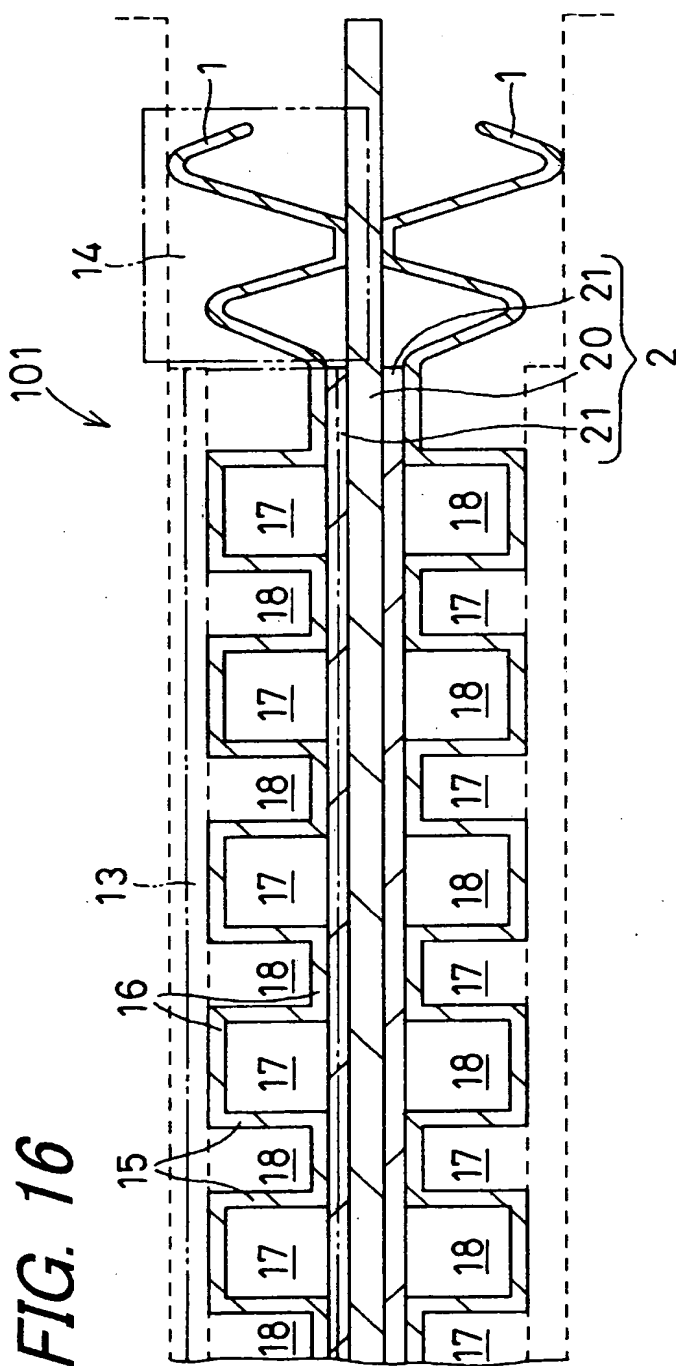
**PCT/JP2004/016521**

[図15]

**FIG. 15**

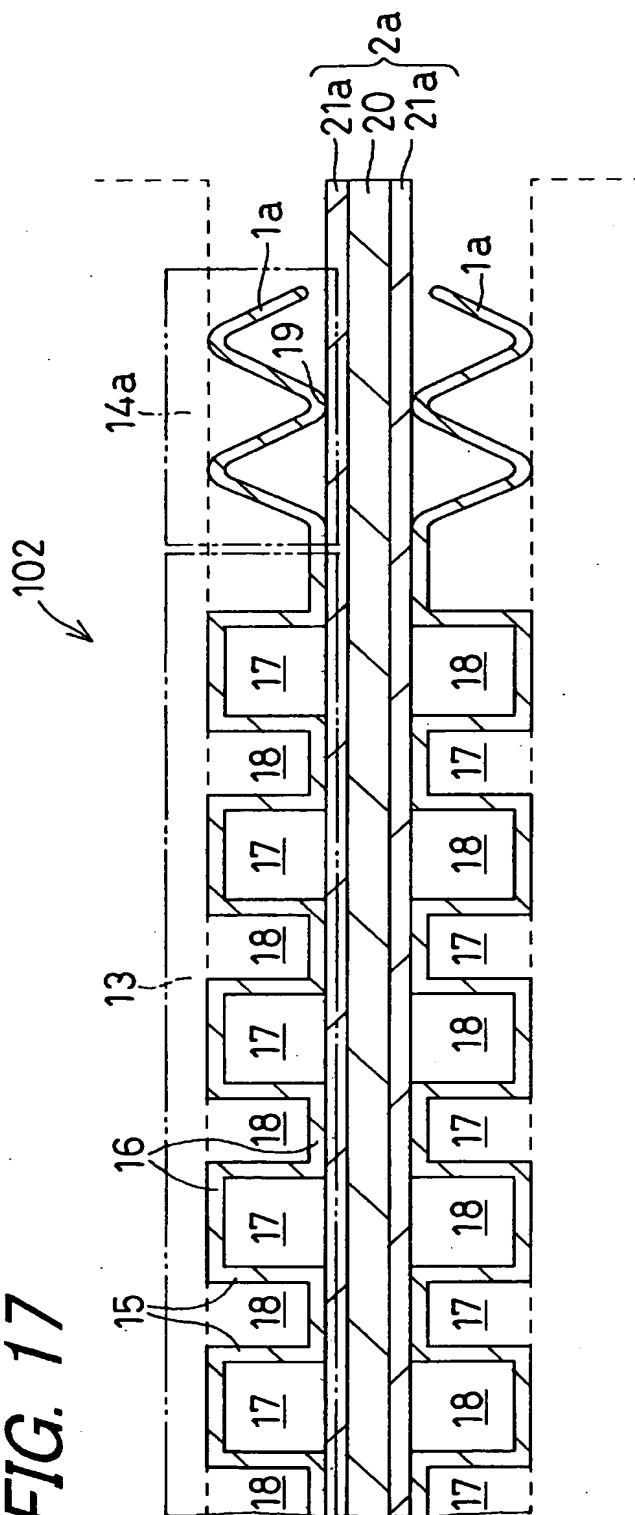


[図16]



[図17]

**FIG. 17**

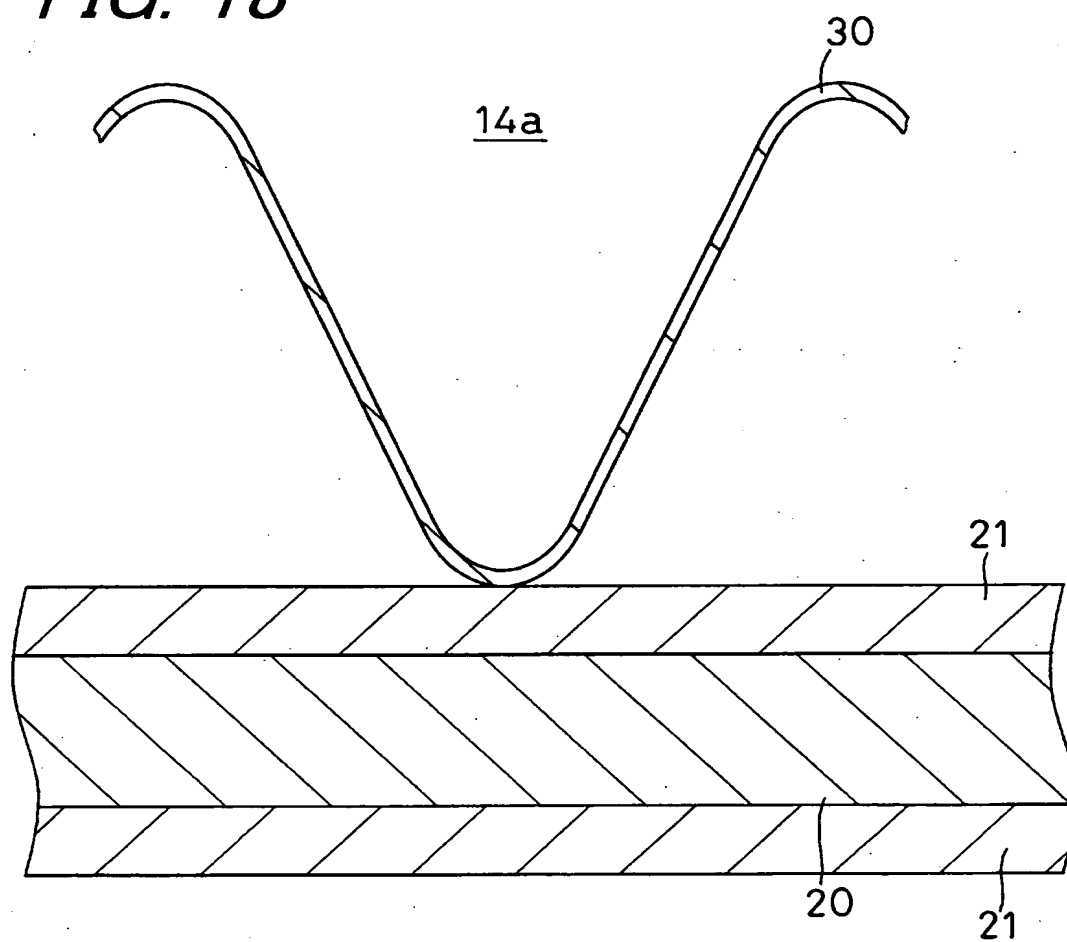


18/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図18]

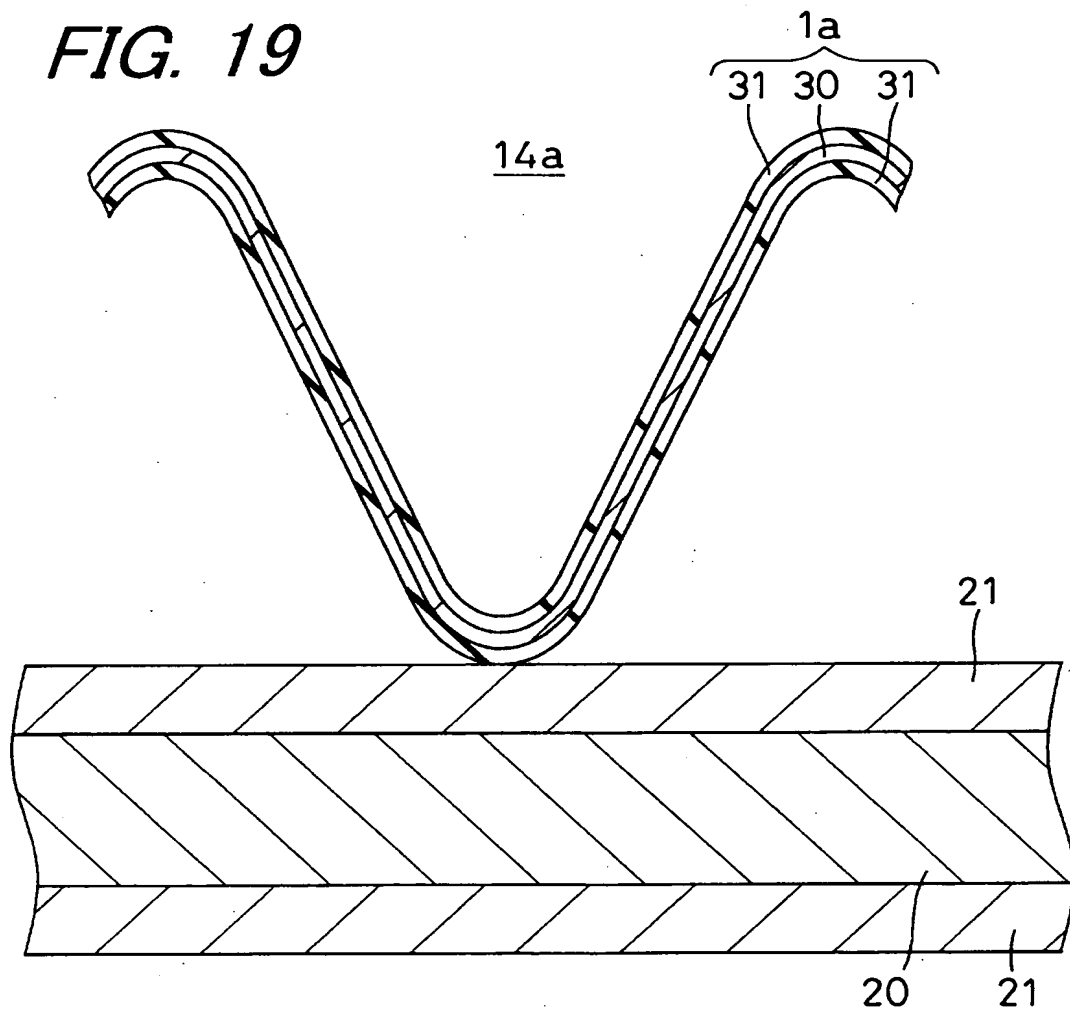
**FIG. 18**

19/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[FIG. 19]

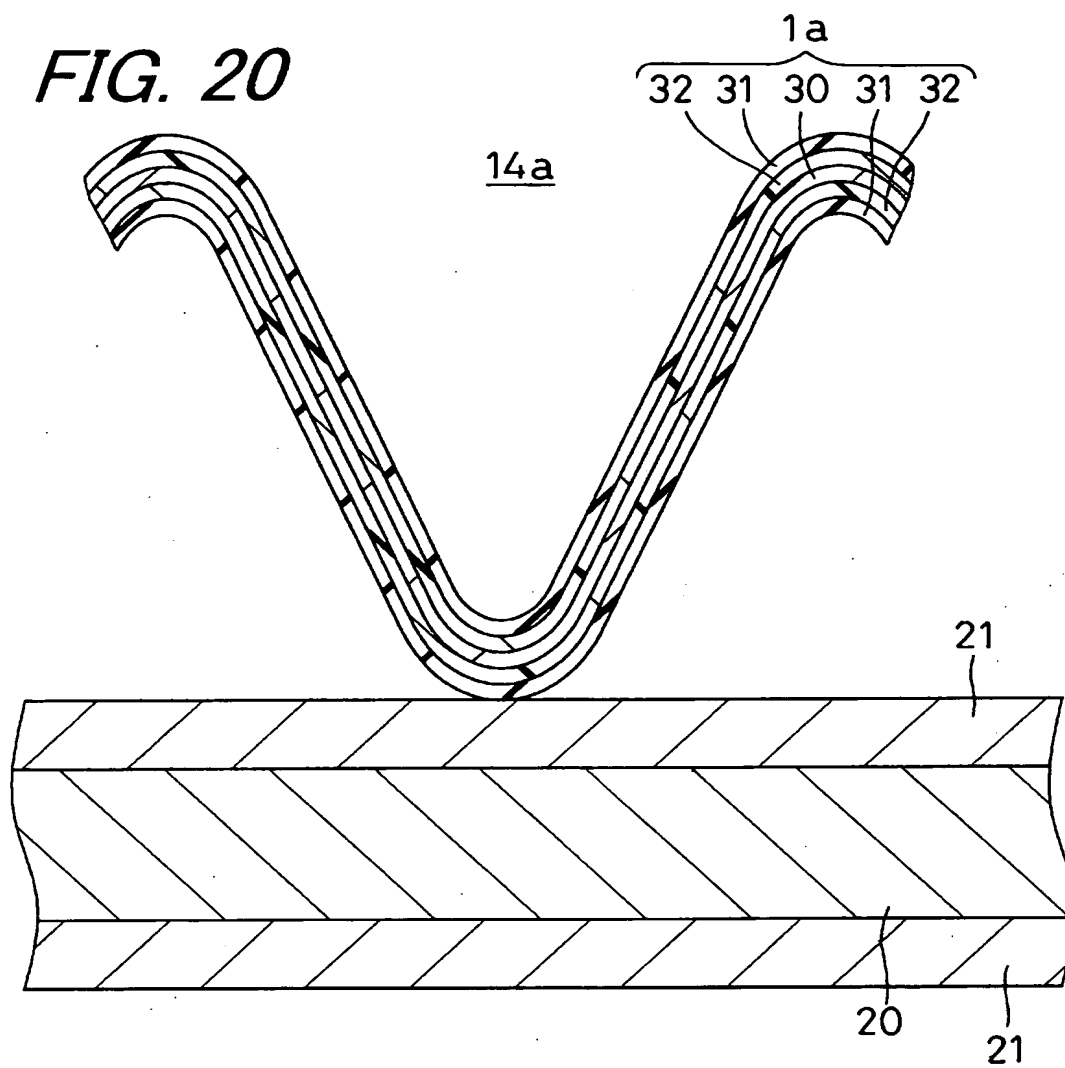


20/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図20]

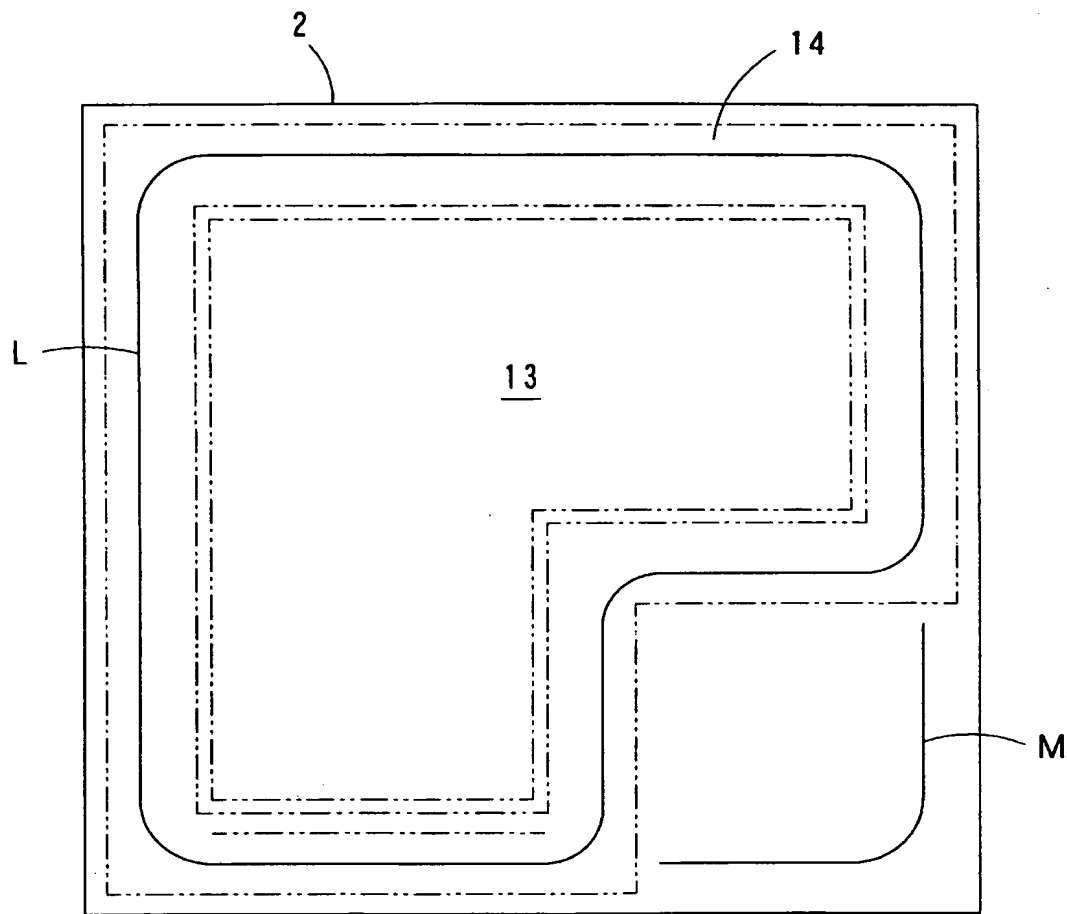
**FIG. 20**

21/21

WO 2005/045971

PCT/JP2004/016521

[図21]

**FIG. 21**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/016521

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 10-92447 A (Mitsubishi Electric Corp.), 10 April, 1998 (10.04.98), Claims; Par. No. [0018]; Fig. 3 (Family: none)	1-3, 5 4, 6-11
Y	JP 63-289770 A (Mitsubishi Electric Corp.), 28 November, 1988 (28.11.88), Claims; Figs. 1 to 2 (Family: none)	4, 6-11
Y	JP 2000-133290 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 12 May, 2000 (12.05.00), Claims; Fig. 1 (Family: none)	8-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"I" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
14 January, 2005 (14.01.05)

Date of mailing of the international search report  
01 February, 2005 (01.02.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/016521

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2000-243408 A (Toyota Motor Corp.), 08 September, 2000 (08.09.00), Claims; Par. Nos. [0037] to [0039]; Figs. 1, 3, 6, 7 & DE 19961496 A1 Claims; Figs. 1, 3, 6, 7	12-14, 16-17 15, 18
Y	JP 2001-357859 A (Riken Corp.), 26 December, 2001 (26.12.01), Claims; Fig. 1 (Family: none)	15, 18
Y	JP 2001-351642 A (Riken Corp.), 21 December, 2001 (21.12.01), Claims; Fig. 1 (Family: none)	15, 18

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2004/016521

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Whereas, as described (on the extra sheet), for a group of inventions in claims to fulfill the requirement of unity of invention, there must exist special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept, claims in this international application describes three inventions classified as "claims 1-5", "claims 6-11" and "claims 12-18".

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/016521

Continuation of Box No. III of continuation of first sheet (2)

For a group of inventions in claims to fulfill the requirement of unity of invention, there must exist special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept.

The inventions in "claims 1-5" are so linked as to form a single general inventive concept by using the invention in claim 1 as a special technical feature.

The inventions in "claims 6-11" are so linked as to form a single general inventive concept by using the invention in claim 6 as a special technical feature.

The inventions in "claims 12-18" are so linked as to form a single general inventive concept by using the invention in claim 12 as a special technical feature.

The inventions in claims 1-18 are linked only in terms of a matter that "a separator interposed between a plurality of electrolyte assemblies each having a catalyst electrode provided on the surface, in a thickness direction, of an electrolyte layer containing an electrolyte medium, the separator having a separation unit for separating the flow paths of fuel gas and oxidizing gas", and the inventions in claims 1-11 are linked only in terms of a matter that "a separator interposed between a plurality of electrolyte assemblies each having a catalyst electrode provided on the surface, in a thickness direction, of an electrolyte layer containing an electrolyte medium, the separator having a separation unit for separating the flow paths of fuel gas and oxidizing gas and a seal unit for preventing the leakage of fuel gas and oxidizing gas". However, these matters are disclosed in prior-art documents, such as JP 2-168563 A (Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.), 28 June, 1990 (28.06.90), JP 6-163063 A (Institut of Gas Technology), 10 June, 1994 (10.06.94), JP 9-199141 A (Yoyu Tansan'engata Nenryo Denchi Hatsuden Sy) 31 July, 1997 (31.07.97), JP 2002-175818 A (Honda Motor Co., Ltd.), 21 June, 2002 (21.06.02), JP 2002-237317 A (Honda Motor Co., Ltd.) 23 August, 2002 (23.08.02), a microfilm recording the description and drawing details attached to the application of JP 61-120977 (JP 63-28251), (Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.), 24 February, 1988 (24.02.88), and therefore they do not constitute special technical features.

Therefore, the inventions in "claims 1-5", the inventions in "claims 6-11", the inventions in "claims 12-18" are mutually different in special technical features.

Accordingly, the inventions in "claims 1-5", the inventions in "claims 6-11", the inventions in "claims 12-18" are not so linked as to form a single general inventive concept, and claims 1-18 do not clearly fulfill the requirement of unity of invention.

Therefore, the claims in this international application describe three inventions classified as "claims 1-5", "claims 6-11", and "claims 12-18".

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/016521

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2005年

日本国登録実用新案公報 1994-2005年

日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 10-92447 A (三菱電機株式会社) 1998. 04. 10 【特許請求の範囲】、【0018】、【図3】 (ファミリーなし)	1-3、5
Y		4、6-11
Y	J P 63-289770 A (三菱電機株式会社) 1988. 11. 28 特許請求の範囲、第1-2図 (ファミリーなし)	4、6-11
Y	J P 2000-133290 A (三菱樹脂株式会社) 2000. 05. 12【特許請求の範囲】、【図1】 (ファミリーなし)	8-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14. 01. 2005

国際調査報告の発送日

01. 2. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

前田 寛之

4X

2930

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2004/016521

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 2000-243408 A (トヨタ自動車株式会社) 2000. 09. 08 【特許請求の範囲】、【0037】-【0039】、【図1】、【図3】、【図6】、【図7】	12-14、 16-17
Y	& DE 19961496 A1 特許請求の範囲、図1、3、6、7	15、18
Y	J P 2001-357859 A (株式会社リケン) 2001. 12. 26 【特許請求の範囲】、【図1】 (ファミリーなし)	15、18
Y	J P 2001-351642 A (株式会社リケン) 2001. 12. 21 【特許請求の範囲】、【図1】 (ファミリーなし)	15、18

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/016521

## 第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

（特別ページ）に記載したように、請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、この国際出願の請求の範囲には、「請求の範囲1-5」、「請求の範囲6-11」、「請求の範囲12-18」に区分される3個の発明が記載されていると認める。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2004/016521

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要である。

「請求の範囲1-5」に記載されている発明は、請求の範囲1に記載されている発明を特別な技術的特徴とすることによって単一の一般的発明概念を形成するように関連していると認められる。

「請求の範囲6-11」に記載されている発明は、請求の範囲6に記載されている発明を特別な技術的特徴とすることによって単一の一般的発明概念を形成するように関連していると認められる。

「請求の範囲12-18」に記載されている発明は、請求の範囲12に記載されている発明を特別な技術的特徴とすることによって単一の一般的発明概念を形成するように関連していると認められる。

なお、請求の範囲1-18に記載されている発明は、「電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を有するセパレータ」という事項でのみ連関し、また、請求の範囲1-11に記載されている発明は、「電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有するセパレータ」という事項でのみ連関しているが、これらの事項は、先行技術文献、例えば、JP 2-168563 A (石川島播磨重工業株式会社) 1990. 06. 28、JP 6-163063 A (インスティテュート・オブ・ガス・テクノロジー) 1994. 06. 10、JP 9-199141 A (溶融炭酸塩型燃料電池発電システム技術研究組合) 1997. 07. 31、JP 2002-175818 A (本田技研工業株式会社) 2002. 06. 21、JP 2002-237317 A (本田技研工業株式会社) 2002. 08. 23、及び、日本国実用新案登録出願61-120977号 (日本国実用新案登録出願公開63-28251号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を記録したマイクロフィルム (石川島播磨重工業株式会社) 1988. 02. 24等に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。

してみると、「請求の範囲1-5」に記載されている発明と、「請求の範囲6-11」に記載されている発明と、「請求の範囲12-18」に記載されている発明は、互いに、特別な技術的特徴を異にしていると認める。

したがって、「請求の範囲1-5」に記載されている発明と、「請求の範囲6-11」に記載されている発明と、「請求の範囲12-18」に記載されている発明は、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているとは認められず、請求の範囲1-18が発明の単一性の要件を満たしていないことは明らかである。

よって、この国際出願の請求の範囲には、「請求の範囲1-5」、「請求の範囲6-11」、「請求の範囲12-18」に区分される3個の発明が記載されていると認めざるを得ない。